



Etude des instabilités volumiques en extrusion de polystyrène et polypropylène

Christelle Combeaud

► To cite this version:

Christelle Combeaud. Etude des instabilités volumiques en extrusion de polystyrène et polypropylène. Mécanique [physics.med-ph]. École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2004. Français. NNT : . tel-00413026

HAL Id: tel-00413026

<https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-00413026>

Submitted on 3 Sep 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ECOLE DES MINES
DE PARIS

Ecole Doctorale 364 : Sciences Fondamentales et Appliquées

N° attribué par la bibliothèque

THESE

pour obtenir le grade de
Docteur de l'Ecole des Mines de Paris
Spécialité «Sciences et Génie des Matériaux»

présentée et soutenue publiquement par

Melle Christelle COMBEAUD

Soutenue le 15 Décembre 2004

ETUDE DES INSTABILIES VOLUMIQUES EN EXTRUSION DE POLYSTYRENE ET POLYPROPYLENE

**Directeurs de thèse : Yves DEMAY
Bruno VERGNES**

Jury :

Mme Nadia EL KISSI
M. Jacques GUILLET
M. Jean-François AGASSANT
M. Pierre J. CARREAU
M. Ahmed ALLAL

Rapporteur
Rapporteur
Examineur
Examineur
Membre invité

AVANT-PROPOS

Ce travail a été réalisé au sein du Centre de Mise en Forme des Matériaux de l'Ecole des Mines de Paris, à Sophia Antipolis.

Tout d'abord, mes sincères remerciements sont adressés à Bruno VERGNES, maître de recherche à l'Ecole des Mines de Paris, qui a codirigé ce travail. Je tiens à lui exprimer ma profonde gratitude pour s'être montré aussi disponible et présent au cours de ces trois années. Sa rigueur ainsi que son intérêt pour ce travail ont été réels et particulièrement appréciables.

Ma reconnaissance s'adresse également à Yves DEMAY, professeur à l'université de Nice Sophia-Antipolis, pour m'avoir encadrée au cours de ces trois ans. Ses conseils m'ont été précieux.

Rudy VALETTE a par ailleurs largement contribué à l'aboutissement de ce travail et je tiens à lui dire toute ma gratitude.

Jean-François AGASSANT, professeur à l'Ecole des Mines de Paris, a su montrer un grand intérêt à suivre l'évolution de ce travail et je l'en remercie.

Je tiens à remercier Nadia EL KISSI, chargée de recherche CNRS au laboratoire de Rhéologie de Grenoble, ainsi que Jacques GUILLET, professeur à l'université de Saint Etienne, pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ma thèse.

Je remercie Ahmed ALLAL, professeur à l'université de Pau et des Pays de l'Adour, ainsi que Pierre J. CARREAU, professeur à l'Ecole Polytechnique de Montréal, pour avoir accepté de faire partie de mon jury.

Enfin, je remercie tous les gens qui ont su partager leur temps et leur savoir avec moi, dans la réalisation de ce travail. Je pense en particulier aux membres du CEMEF, du LSP (Erlangen) et de l'université Laval (Québec).

Je n'oublie pas bien entendu David, ainsi que mes parents, ma sœur, mon frère et mes amis (les grâces EVE se reconnaîtront) pour m'avoir encouragée au cours de ces trois années.

Enfin, je dédie ce mémoire au bébé que je porte.

TABLE DES MATIERES

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION.....	1
I. SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE.....	3
I. 1. Présentation générale des instabilités d'extrusion	5
I. 1. 1. Classification des instabilités d'extrusion.....	6
I. 1. 2. Les défauts d'extrusion de type « polymères linéaires ».....	7
I. 1. 3. Les défauts d'extrusion de type « polymères ramifiés ».....	7
I. 1. 4. Le défaut de « peau de requin ».....	8
I. 1. 5. Le défaut « oscillant ».....	9
I. 1. 6. Le défaut « hélicoïdal ».....	9
I. 1. 7. Le défaut « chaotique ».....	10
I. 2. Visualisations de l'écoulement dans la région d'entrée de la filière	11
I. 2. 1. Visualisation de lignes de courant dans l'écoulement amont : utilisation de traceurs.....	11
I. 2. 2. Répartition des contraintes dans l'écoulement amont : la biréfringence d'écoulement...16	
I. 2. 3. Répartition du champ de vitesse dans l'écoulement amont : la vélocimétrie.....	17
I. 3. Caractérisations de l'instabilité volumique : courbes d'écoulement et fréquences associées à l'instabilité.....	19
I. 3. 1. Courbes d'écoulement associées à l'instabilité.....	19
I. 3. 2. Fréquences de l'instabilité	20
I. 4. Influence des conditions d'écoulement sur l'instabilité volumique	21
I. 4. 1. Température d'écoulement	21
I. 4. 2. Écoulement axisymétrique ou écoulement en filière plate.....	21
I. 4. 3. La longueur de filière	22
I. 4. 4. L'angle d'entrée de la filière	23
I. 4. 5. Utilisation de filtres d'entrée.....	25
I. 5. Influence des propriétés moléculaires et rhéologiques du polymère	25
I. 5. 1. La masse moléculaire et la polydispersité	25
I. 5. 2. L'enchevêtrement et le caractère branché	26
I. 5. 3. L'élasticité	26
I. 6. Mécanismes d'initiation de l'instabilité volumique	27
I. 6. 1. L'inertie.....	27
I. 6. 2. Les effets thermiques.....	27
I. 6. 3. Le glissement.....	27
I. 6. 4. L'élongation de l'écoulement amont	28
I. 7. Le rôle des recirculations dans la déstabilisation de l'écoulement principal	28
I. 8. Caractérisation de l'écoulement au déclenchement de l'instabilité.....	30
I. 8. 1. Critères de déclenchement de l'instabilité volumique.....	30
I. 8. 2. Caractérisation macroscopique de l'écoulement d'entrée.....	34
I. 8. 3. Caractérisation de l'écoulement d'entrée à l'échelle macromoléculaire.....	35

II. MATERIELS ET DISPOSITIF EXPERIMENTAL.....37

II. 1. Caractéristiques moléculaires et rhéologiques des polymères étudiés38

II. 1. 1. Caractéristiques moléculaires38

II. 1. 2. Caractérisation rhéologique.....39

II. 2. Le rhéomètre capillaire45

II. 2. 1. Principe de fonctionnement.....45

II. 2. 2. Les filières d'extrusion utilisées46

II. 2. 3. Principe et dépouillement des mesures47

II. 3. Extrusion en filière plate transparente.....48

II. 3. 1. Description du montage expérimental d'extrusion.....49

II. 3. 2. Principe et méthodes de mesures associés à la biréfringence d'écoulement.....52

II. 3. 3. Principe et méthodes de mesures associés à la vélocimétrie laser-Doppler.....56

III. ETUDE DU DEFAUT VOLUMIQUE EN ECOULEMENT AXISYMETRIQUE 60

III. 1. Courbes d'écoulement apparentes et aspect des extrudats.....62

III. 1. 1. Courbes d'écoulement apparentes pour différents rapports de longueur L/D62

III. 1. 2. Déclenchement du défaut hélicoïdal64

III. 1. 3. Courbes d'écoulement apparentes pour différents diamètres D65

III. 2. Courbes d'écoulement en contrainte réelle66

III. 3. Etude et quantification du défaut hélicoïdal.....67

III. 3. 1. Méthode de quantification du défaut hélicoïdal67

III. 3. 2. Influence de la longueur d'écoulement sur la morphologie du défaut.....68

III. 3. 3. Influence du diamètre de filière sur la morphologie du défaut71

III. 4. Influence de la température.....73

III. 4. 1. Déclenchement du défaut hélicoïdal73

III. 4. 2. Quantification du défaut hélicoïdal75

III. 5. Influence de l'angle d'entrée de la filière78

III. 5. 1. Déclenchement du défaut hélicoïdal78

III. 5. 2. Quantification du défaut hélicoïdal79

III. 6. Critères de déclenchement de l'instabilité hélicoïdale.....80

III. 6. 1. Pression critique81

III. 6. 2. Contrainte de cisaillement critique82

III. 6. 3. Contrainte élongationnelle critique.....83

III. 6. 4. Taux de déformation élongationnel critique85

III. 6. 5. Nombre de Weissenberg critique86

III. 7. Etude comparative des différents polymères utilisés.....89

III. 7. 1. Comparaison du PS 1 et du PS 2.....89

III. 7. 2. Comparaison du PS 1 et du PP.....90

III. 8. Conclusion92

IV. ETUDE DU DEFAUT VOLUMIQUE EN FILIERE PLATE.....94

IV. 1. Etude de l'instabilité volumique dans une contraction brusque par biréfringence d'écoulement.....96

IV. 1. 1. Courbes d'écoulement apparentes et clichés de biréfringence associés96

IV. 1. 2. Quantification des clichés de biréfringence.....99

IV. 2. Etude de l'instabilité volumique en sortie de filière	100
IV. 2. 1. Morphologie des extrudats obtenus	100
IV. 2. 2. Quantification de l'instabilité, en amont et en aval de la filière.....	101
IV. 3. Etude de l'écoulement d'entrée dans une contraction brusque par vélocimétrie laser-Doppler.....	103
IV. 3. 1. Etude de l'écoulement d'entrée en régime stable	103
IV. 3. 2. Etude de l'écoulement secondaire en régime stable.....	105
IV. 3. 3. Etude de l'écoulement d'entrée durant le développement de l'instabilité volumique périodique	106
IV. 3. 4. Etude de la transition entre l'instabilité volumique périodique et l'instabilité chaotique	112
IV. 4. Influence de la température	115
IV. 4. 1. Déclenchement du défaut volumique périodique	115
IV. 4. 2. Fréquence du défaut volumique périodique.....	116
IV. 5. Influence du rapport de contraction	117
IV. 5. 1. Déclenchement du défaut volumique périodique	117
IV. 5. 2. Fréquence du défaut volumique périodique.....	119
IV. 6. Influence de la forme du convergent d'entrée	120
IV. 6. 1. Déclenchement et fréquence du défaut volumique périodique avec un entrefer H de 1.0 mm	120
IV. 6. 2. Déclenchement du défaut volumique périodique avec un entrefer H de 0.5 mm	123
IV. 6. 3. Déclenchement du défaut volumique périodique dans le cas du polypropylène.....	124
IV. 7. Conclusion.....	125

V. RECHERCHE DES CRITERES DE DECLENCHEMENT DU DEFAUT VOLUMIQUE PERIODIQUE ET INTERPRETATIONS.....127

V. 1. Etude du déclenchement de l'instabilité volumique périodique par biréfringence d'écoulement.....	129
V. 1. 1. Influence de la géométrie de convergent.....	129
V. 1. 2. Influence du rapport de contraction (avec le PP).....	132
V. 2. Etude du déclenchement de l'instabilité volumique périodique par vélocimétrie laser-Doppler.....	135
V. 2. 1. Principe de calcul des taux de déformation et des déformations, selon la direction d'écoulement	135
V. 2. 2. Influence du rapport de contraction et de la forme du convergent sur $\dot{\epsilon}_{xx}$	140
V. 2. 3. Conditions d'initiation du défaut pour le PS 1	143
V. 2. 4. Comparaison des comportements du PS 1 et du PP.....	147
V. 3. Etude de l'écoulement en géométrie plane par simulation numérique en éléments finis.....	149
V. 3. 1. Description du code de calcul et de la loi de comportement utilisés	149
V. 3. 2. Identification des paramètres de la loi de comportement.....	152
V. 3. 3. Géométrie de maillages et conditions limites utilisées	155
V. 3. 4. Simulation numérique obtenue pour des conditions d'écoulement stables	156
V. 3. 5. Simulation numérique obtenue pour des conditions d'écoulement critiques	164
V. 3. 6. Discussion.....	165
V. 4. Comportement singulier du PS 2 en écoulement axisymétrique.....	169
V. 4. 1. Description du défaut observé.....	169
V. 4. 2. Courbes d'écoulement apparentes, pour différents rapports L/D	170

V. 4. 3. Etude du signal de pression dans la zone oscillante	172
V. 4. 4. Influence de la température.....	175
V. 4. 5. Comparaison des études menées avec les filières de demi-angle de 45 et 90°.....	177
CONCLUSION.....	179
ANNEXES.....	183
A. I. Géométries d'écoulement utilisées en filière plate.....	184
A. II. Courbes d'écoulement apparentes du PS 2 obtenues en rhéométrie capillaire, pour différents rapports de longueur L/D.....	185
A. III. Courbes d'écoulement apparentes obtenues en rhéométrie capillaire, pour différents diamètres D	186
A. III. 1. Courbes d'écoulement apparentes du PS 1 pour différents rapports de longueur L/D	186
A. III. 2. Courbes d'écoulement apparentes du PP	187
A. III. 3. Courbes d'écoulement apparentes du PS 2.....	188
A. IV. Courbes d'écoulement en contrainte réelle, obtenue en rhéométrie capillaire	189
A. IV. 1. Courbes d'écoulement du PP	189
A. IV. 2. Courbes d'écoulement du PS 2	189
A. V. Quantification du défaut hélicoïdal du PP : mesure de pas, diamètres et volumes hélicoïdaux.....	190
A. V. 1. Mesure de pas et diamètres hélicoïdaux, avec un même diamètre D	190
A. V. 2. Mesure de pas et diamètres hélicoïdaux, avec un même rapport L/D	190
A. V. 3. Mesure de volumes hélicoïdaux.....	191
A. VI. Influence de la température, en écoulement axisymétrique.....	192
A. VI. 1. Déclenchement du défaut hélicoïdal pour le PP	192
A. VI. 2. Déclenchement du défaut hélicoïdal pour le PS 2.....	192
A. VI. 3. Quantification du défaut hélicoïdal pour le PP.....	193
A. VII. Contrainte élongationnelle critique, calculée en rhéométrie capillaire, pour le PS 2	194
A. VIII. Nombre de Weissenberg critique calculé en rhéométrie capillaire.....	195
A. VIII. 1. Déclenchement du défaut hélicoïdal pour le PP	195
A. VIII. 2. Déclenchement du défaut hélicoïdal pour le PS 2	195
A. IX. Fréquence du défaut volumique périodique pour le PP, en filière plate.....	196
A. X. Identification des paramètres du modèle Rolie-Poly	197
A. X. 1. Equation sans étirement en régime permanent.....	197
A. X. 2. Equation avec étirement en régime permanent.....	198
A. XI. Influence de la température sur le déclenchement du défaut volumique oscillant, avec le PS 2.....	201
A. XI. 1. Courbes d'écoulement apparentes obtenues avec $L/D = 4$	201
A. XI. 2. Courbes d'écoulement apparentes obtenues avec $L/D = 8$	202
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	203

INTRODUCTION

INTRODUCTION

A l'heure actuelle, il existe de nombreux procédés de mise en forme des matières plastiques ; le plus répandu d'entre eux est l'extrusion. Ce procédé de fabrication consiste à convoyer un polymère fondu à l'aide d'une vis et à le forcer, de manière continue, à travers une filière de forme donnée. Les propriétés de l'objet alors fabriqué, incluant la morphologie développée durant la phase de refroidissement et de solidification, dépendent en partie des contraintes et de l'orientation induite durant la mise en forme [1]. La plupart des polymères utilisés commercialement possèdent une masse moléculaire suffisamment élevée pour que leurs chaînes soient fortement enchevêtrées et pour que leur comportement soit macroscopiquement très différent des fluides à faible masse moléculaire. De nombreuses manifestations comportementales distinguent en effet les polymères viscoélastiques des fluides classiques à comportement newtonien : une forte dépendance de la viscosité au cisaillement, un rapport entre la viscosité élongationnelle et la viscosité en cisaillement largement supérieur à trois, une dépendance conséquente en temps à l'établissement ou à la relaxation de contraintes, des pertes de charge élevées à l'entrée d'un convergent, des phénomènes de gonflement de l'extrudat en sortie de filière ou encore l'apparition de défauts d'extrusion pour des débits d'écoulement élevés.

Notre étude vise à décrire l'un de ces défauts, l'instabilité volumique, et plus particulièrement le défaut hélicoïdal que l'on peut observer en rhéométrie capillaire, lors de l'extrusion de polymères de type ramifié. Il s'agira de mettre en évidence et d'interpréter les conditions d'écoulement nécessaires au déclenchement et au développement de cette instabilité de volume.

La présentation de l'étude débute par un résumé des connaissances actuelles relatives aux instabilités d'extrusion, en particulier aux instabilités de volume. Ce résumé fait l'objet du chapitre I.

Dans un second temps, à travers le chapitre II, nous présentons la caractérisation moléculaire et rhéologique des trois produits étudiés au cours de ces travaux (deux polystyrènes et un polypropylène). Par ailleurs, nous décrivons les deux dispositifs expérimentaux utilisés : le rhéomètre capillaire ainsi que la filière plate transparente alimentée par une extrudeuse.

Le chapitre III s'attache à décrire le comportement des trois polymères en écoulement axisymétrique. Nous étudions ainsi l'influence des conditions d'écoulement sur le déclenchement du défaut hélicoïdal (température d'écoulement, diamètre, longueur et angle d'entrée de filière). Nous avons également quantifié l'instabilité en sortie de filière, à partir de prélèvements d'extrudats affectés du défaut.

En complément aux résultats issus de la rhéométrie capillaire, une étude du même défaut a été menée en filière plate transparente et est présentée au chapitre IV. Nous avons pu caractériser l'écoulement d'entrée du polymère, dans des conditions stables ou instables, grâce à un dispositif de biréfringence d'écoulement et à un système de vélocimétrie laser-Doppler.

Enfin, le dernier chapitre s'articule autour de quatre sous-chapitres dont l'objectif commun est d'interpréter les conditions d'écoulement nécessaires pour que l'instabilité volumique périodique se déclenche. On décrit, à l'aide de différences de contraintes normales ou encore de vitesses de déformation, estimées respectivement en biréfringence d'écoulement ou en vélocimétrie laser-Doppler, l'initiation du défaut. Une étude de l'écoulement en géométrie plane par simulation numérique en éléments finis vient compléter les précédents résultats expérimentaux. Enfin, nous concluons le chapitre V par l'étude de l'écoulement axisymétrique d'un des deux polystyrènes dont le comportement nous est apparu totalement contradictoire par rapport à tous les résultats précédents.

CHAPITRE I
SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE

CHAPITRE I

SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE

Résumé

Ce chapitre vise à mettre en évidence les connaissances actuelles relatives aux instabilités d'extrusion. On s'attache tout particulièrement au cas des défauts volumiques qui comprennent le défaut hélicoïdal et le défaut chaotique. Il existe une littérature associée à ces défauts qui date essentiellement des années comprises entre 1960 et 1975. Elle est relative à des polyéthylènes haute et basse densité et à des polystyrènes. Le défaut volumique, qui est un défaut initié à l'entrée de la filière, a fait l'objet de nombreuses visualisations de l'écoulement en amont d'une contraction. De nombreux paramètres de l'écoulement (température, angle de convergent, longueur de filière) ont une influence sur le déclenchement du défaut mais aussi sur la morphologie de l'extrudat. En outre, il apparaît que les propriétés rhéologiques viscoélastiques du polymère fondu conditionnent la naissance d'une instabilité de volume : le site d'initiation qu'est la contraction suppose la présence d'importantes contraintes élongationnelles au sein de l'écoulement principal.

Table des Matières

I. 1. Présentation générale des instabilités d'extrusion.....	5
I. 1. 1. Classification des instabilités d'extrusion.....	6
I. 1. 2. Les défauts d'extrusion de type « polymères linéaires ».....	7
I. 1. 3. Les défauts d'extrusion de type « polymères ramifiés ».....	7
I. 1. 4. Le défaut de « peau de requin ».....	8
I. 1. 5. Le défaut « oscillant ».....	9
I. 1. 6. Le défaut « hélicoïdal »	9
I. 1. 7. Le défaut « chaotique ».....	10
I. 2. Visualisations de l'écoulement dans la région d'entrée de la filière.....	11
I. 2. 1. Visualisation de lignes de courant dans l'écoulement amont : utilisation de traceurs.....	11
I. 2. 2. Répartition des contraintes dans l'écoulement amont : la biréfringence d'écoulement...	16
I. 2. 3. Répartition du champs de vitesse dans l'écoulement amont : la vélocimétrie	17
I. 3. Caractérisations de l'instabilité volumique : courbes d'écoulement et fréquences associées à l'instabilité.....	19
I. 3. 1. Courbes d'écoulement associées à l'instabilité.....	19
I. 3. 2. Fréquences de l'instabilité	20
I. 4. Influence des conditions d'écoulement sur l'instabilité volumique	21

I. 4. 1. Température d'écoulement	21
I. 4. 2. Ecoulement axisymétrique ou écoulement en filière plate.....	21
I. 4. 3. La longueur de filière	22
I. 4. 4. L'angle d'entrée de la filière	23
I. 4. 5. Utilisation de filtres d'entrée.....	25
I. 5. Influence des propriétés moléculaires et rhéologiques du polymère.....	25
I. 5. 1. La masse moléculaire et la polydispersité	25
I. 5. 2. L'enchevêtrement et le caractère branché	26
I. 5. 3. L'élasticité	26
I. 6. Mécanismes d'initiation de l'instabilité volumique	27
I. 6. 1. L'inertie.....	27
I. 6. 2. Les effets thermiques.....	27
I. 6. 3. Le glissement.....	27
I. 6. 4. L'élongation de l'écoulement amont	28
I. 7. Le rôle des recirculations dans la déstabilisation de l'écoulement principal.....	28
I. 8. Caractérisation de l'écoulement au déclenchement de l'instabilité	30
I. 8. 1. Critères de déclenchement de l'instabilité volumique.....	30
I. 8. 2. Caractérisation macroscopique de l'écoulement d'entrée.....	34
I. 8. 3. Caractérisation de l'écoulement d'entrée à l'échelle macromoléculaire.....	35

I. 1. Présentation générale des instabilités d'extrusion

Lors de l'extrusion de polymères fondus, divers défauts et instabilités d'écoulement peuvent apparaître pour de très faibles nombres de Reynolds. Ces instabilités ont des enjeux commerciaux très importants car elles limitent la productivité des procédés d'extrusion. Au cours des trente dernières années, elles ont fait l'objet de nombreuses revues [1-4].

Toute filière d'extrusion possède une région d'entrée appelée «réservoir» suivie d'une contraction, d'un canal d'écoulement et d'une sortie. Elle combine ainsi deux singularités géométriques avec une longueur variable d'écoulement plus ou moins totalement développé. D'importants niveaux de contraintes sont appliqués à l'écoulement, notamment au niveau du convergent, des parois et des singularités géométriques de la filière. Nous verrons que ces entités géométriques à hauts niveaux de contraintes coïncident avec les sites d'initiation de la plupart des instabilités.

On distingue diverses morphologies d'instabilités.

On rencontre d'abord des instabilités affectant principalement la surface de l'extrudat. Il s'agit du défaut de « peau de requin », présentant des craquelures régulières à la périphérie de l'extrudat :

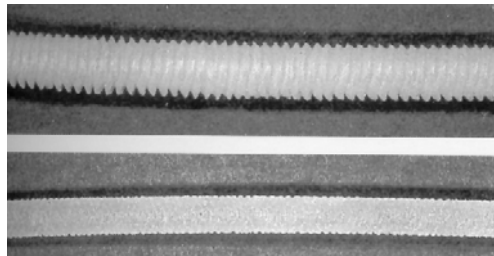


Fig. 1. 1 : Apparence d'un extrudat affecté du défaut de « peau de requin » [5].

Le défaut « oscillant » se caractérise par une alternance de zones de morphologies différentes. Il s'agit le plus souvent de zones affectées d'un défaut « peau de requin » et de zones lisses :

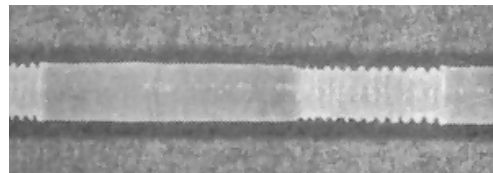


Fig. 1. 2 : Apparence d'un extrudat affecté du défaut oscillant [5].

Des instabilités hélicoïdales peuvent aussi affecter le volume de l'extrudat, de façon organisée :

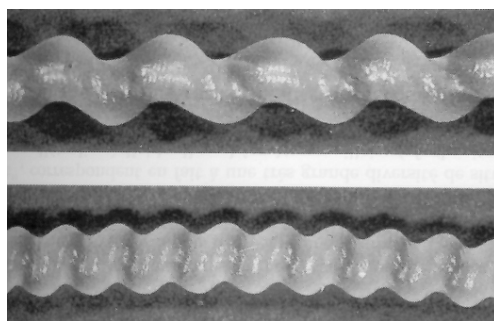


Fig. 1. 3 : Apparence d'un extrudat affecté du défaut hélicoïdal [5].

Enfin, le défaut chaotique présente des irrégularités aléatoires dans le volume de l'extrudat :

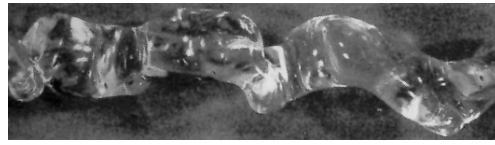


Fig. 1. 4 : Apparence d'un extrudat affecté du défaut chaotique [5].

I. 1. 1. Classification des instabilités d'extrusion

La terminologie rencontrée dans la littérature anglo-saxonne pour désigner les défauts d'extrusion en général est « melt fracture ». A l'introduction de ce terme, on pensait que toutes les instabilités étaient le résultat de ruptures locales du matériau. A l'heure actuelle, rien ne prouve que ces phénomènes soient étroitement liés à la rupture de polymères fondus.

Une classification de ces défauts s'est donc avérée nécessaire et a été, au début des années 1960, mise en place à partir de l'observation de la morphologie des extrudats. Elle ne fut pas toujours précise puisqu'elle dépendait directement de la nature et de la précision de la méthode d'observation du défaut. Plusieurs années ont notamment été indispensables, grâce à l'avancée des techniques d'observation, pour distinguer, par exemple, un défaut « peau de requin » prononcé d'une instabilité volumique présentant des phénomènes de vagues régulières. Cette « première » littérature est donc sujette à de nombreuses confusions et doit en conséquence être interprétée avec précaution.

Dès les années 1970, Den Otter [6] classe les instabilités d'extrusion d'après des études comparatives effectuées entre des polyéthylènes haute densité (PEHD) et basse densité (PEBD). En effet, il existe des différences de comportements entre les deux types de polyéthylènes. Le PEHD présente un défaut de « peau de requin », suivi du développement du défaut oscillant. Pour des débits d'écoulement supérieurs, les défauts de volume viennent affecter l'extrudat de façon d'abord organisée (défaut hélicoïdal) puis totalement désordonnée (défaut chaotique).

A l'opposé, le PEBD ne présente ni défaut surfacique, ni défaut oscillant : seuls les défauts hélicoïdaux et chaotiques se développent pour des débits d'écoulement suffisamment importants. De telles divergences de comportement ont alors été interprétées de façon très simplificatrice : les polymères linéaires présentent le premier enchaînement de défauts (PEHD) alors que les polymères branchés obéissent au deuxième (PEBD).

Les deux enchaînements de défauts n'obéissent cependant pas aussi simplement au caractère « branché » ou « linéaire » du polymère. A titre d'exemple, le polystyrène et le polypropylène sont des polymères linéaires et présentent néanmoins l'enchaînement que décrit le PEBD.

De plus, le comportement de chaque polymère dépend fortement de ses caractéristiques moléculaires (masse moléculaire et polydispersité) ainsi que des géométries d'écoulement. A titre d'exemple, le défaut oscillant n'existe pas dans le cas de filière orifice.

Malgré tout, la littérature a conservé cette classification : les deux enchaînements de défauts présentés sont toujours attribués respectivement aux polymères de type « linéaire » et « branché ». A l'avenir, lorsque nous utiliserons la terminologie « abusive » de « polymères linéaires » ou « polymères branchés », nous ferons référence à cette classification.

I. 1. 2. Les défauts d'extrusion de type « polymères linéaires »

Cette « famille » comprend des polyéthylènes haute densité (PEHD), des polyéthylènes basse densité linéaires (PEBDL), des polybutadiènes (PB) et des silicones linéaires.

Ces polymères présentent en général une discontinuité de la courbe d'écoulement, qui conduit à une gamme de valeurs de pression pour laquelle deux valeurs de débit sont possibles [3] :

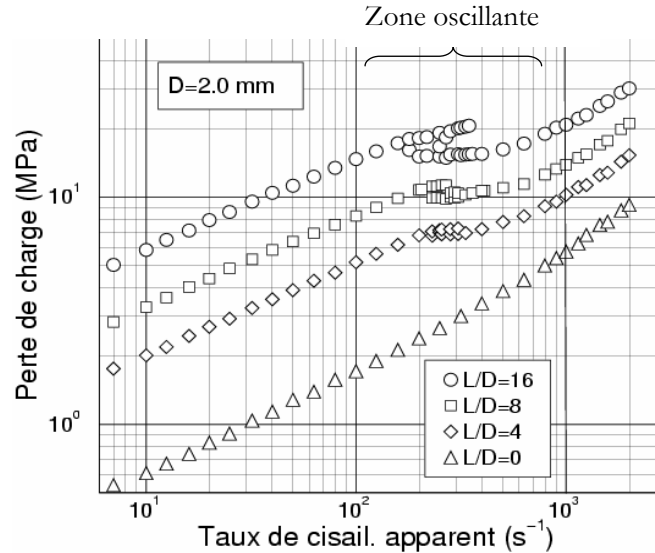


Fig. 1. 5 : Courbe d'écoulement apparente d'un polyéthylène haute densité à 193 °C [7].

L'enchaînement des défauts propre à cette catégorie ne comprend pas forcément le défaut de type hélicoïdal. A titre d'exemple, deux PEHD de masses et distribution de masse différentes risquent soit d'être affectés du défaut hélicoïdal puis du défaut chaotique, soit de présenter le défaut chaotique exclusivement.

I. 1. 3. Les défauts d'extrusion de type « polymères ramifiés »

Au sein de cette catégorie, on rencontre les polyéthylènes basse densité (PEBD), les silicones branchés, les polyméthylméthacrylates (PMMA), les polystyrènes (PS), les polypropylènes (PP), les polyamides (PA), les polytétrafluoroéthylènes (PTFE) et les polychlorures de vinyle (PVC).

La courbe d'écoulement associée à cette famille de polymère ne présente aucune discontinuité :

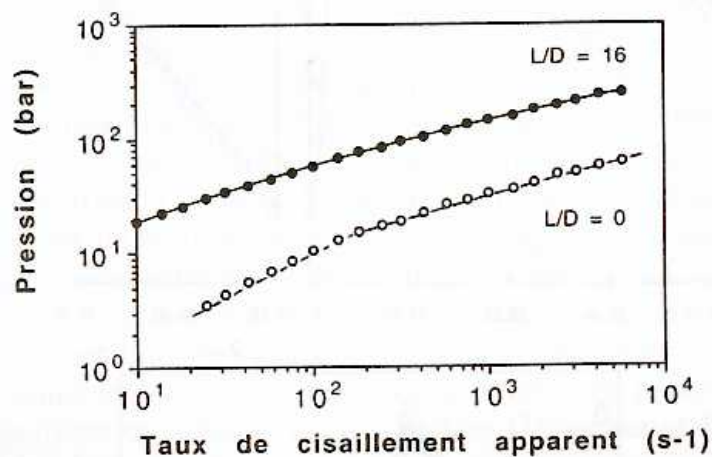


Fig. 1. 6 : Courbe d'écoulement apparente d'un polyéthylène basse densité à 190 °C [5].

De même que pour les polymères « linéaires », le développement du défaut hélicoïdal n'est pas systématique à chaque polymère « branché » et dépend de ses caractéristiques moléculaires.

Rappelons une fois de plus que la classification présentée reste avant tout très simplificatrice. Par exemple, certains silicones linéaires ne présentent pas du tout la discontinuité de courbe d'écoulement, généralement observée chez les polymères linéaires. En définitive, il reste souvent périlleux de tenter de généraliser le comportement des polymères linéaires ou branchés.

I. 1. 4. Le défaut de « peau de requin »

Il s'agit de la première manifestation généralement rencontrée lors de l'extrusion de polymères fondus de type linéaire. Le défaut de « peau de requin » est l'instabilité la plus gênante d'un point de vue industriel puisqu'elle concerne toute la « famille » des polymères linéaires et ceci pour des débits d'écoulements faibles.

Il s'agit de fissures caractéristiques, perpendiculaires à l'écoulement, périodiques et en général de faible amplitude, parfois en filet de vis.

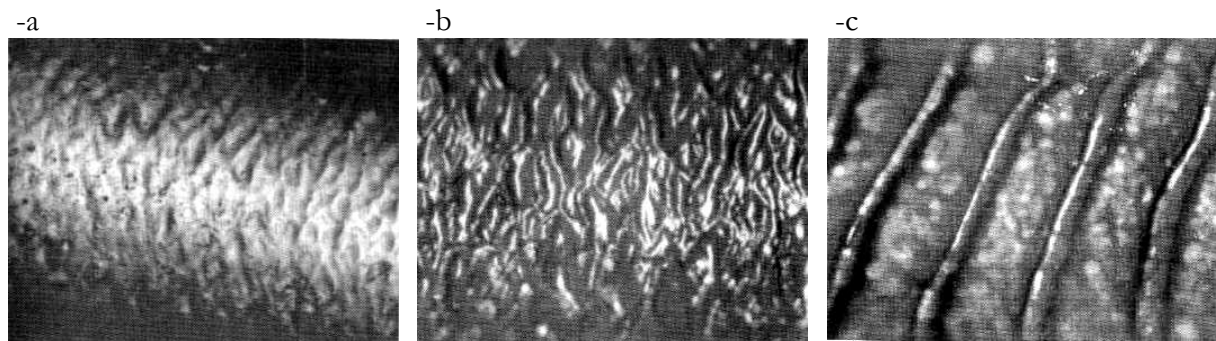


Fig. 1. 7 : Evolution de la surface d'un jonc extrudé à différents taux de cisaillement apparent, pour un PEBDL à 205 °C. (a) : $\dot{\gamma}_{app} = 137 \text{ s}^{-1}$, (b) : $\dot{\gamma}_{app} = 320 \text{ s}^{-1}$, (c) : $\dot{\gamma}_{app} = 572 \text{ s}^{-1}$ [8].

La détection du défaut est d'autant plus aléatoire qu'elle est souvent visuelle. Une faible rugosité ($R_a = 0,1 \text{ } \mu\text{m}$) non détectable à l'œil apparaît généralement pour de faibles cisaillements [9].

L'amplitude du défaut augmente avec le taux de cisaillement appliqué et avec la masse moléculaire du polymère, alors qu'elle diminue si la température augmente.

Il est admis [1, 2, 10, 11] que le défaut de « peau de requin » est initié au moment où le fluide quitte la sortie de la filière, sous l'action d'importantes contraintes élongationnelles développées à la singularité géométrique de sortie.

La biréfringence d'écoulement [12, 13] confirme cette concentration de contraintes en sortie de filière, de même que quelques simulations numériques [14, 15].

L'utilisation de parois d'écoulement de rugosité faible ou de faible énergie de surface (parois fluorées par exemple) permet de réduire voire de supprimer les défauts surfaciques de type « peau de requin » [16].

I. 1. 5. Le défaut « oscillant »

La vitesse de sortie de l'extrudat et la perte de charge mesurée en amont de la filière (dans le réservoir de matière fondue) sont instationnaires. On observe une succession périodique de deux morphologies différentes : lisse et affectée du défaut de « peau de requin » ou bien encore lisse et affectée d'un défaut de volume.

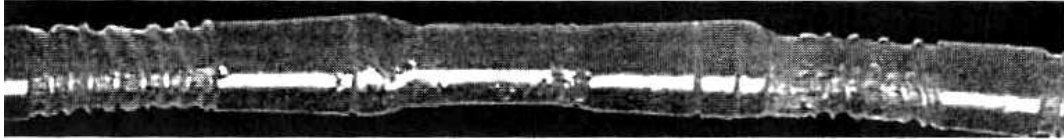


Fig. 1. 8 : Aspect d'un extrudat affecté du défaut oscillant, pour un polyéthylène métallocène à 155 °C [7].

La courbe d'écoulement (débit/pression) caractéristique possède une discontinuité séparant deux « branches d'écoulement ». Ces dernières sont dénommées « branche I » et « branche II » respectivement. La zone intermédiaire entre les branches I et II correspond au développement du défaut oscillant et est caractérisée par un cycle d'hystérésis entre les deux branches stables de la courbe d'écoulement.

La taille de la zone oscillante dépend du rapport L/D caractéristique de la filière utilisée, de la température, de la masse moléculaire et de la polymolécularité du polymère.

Les oscillations de pression observées sont présentes dans le réservoir amont et se propagent jusqu'à la sortie de la filière. Pendant une expérimentation en rhéométrie capillaire, l'amplitude des oscillations est constante mais la période diminue avec le temps de mesure, soit avec le volume du réservoir qui se vide. Le phénomène est donc lié à la compressibilité du polymère. La période dépend aussi du débit imposé, de la masse moléculaire et du rapport L/D . La trajectoire suivie le long du cycle d'hystérésis est toujours la même, mais la cinématique évolue en fonction du débit imposé (quand le débit augmente la phase de montée en pression diminue au profit de celle de descente).

A l'heure actuelle, le mécanisme impliqué dans ce phénomène est décrit comme l'alternance de glissement et d'adhésion du polymère à la paroi. Ceci a pu être vérifié par des mesures de vélocimétrie laser-Doppler [17, 18].

I. 1. 6. Le défaut « hélicoïdal »

L'extrudat forme une hélice ou une ondulation dans le volume plutôt régulière (cette hélice peut aussi être assez dégénérée).



Fig. 1. 9 : Aspect d'un extrudat affecté du défaut hélicoïdal, pour un polypropylène à 190 °C [19].

Le phénomène et ses interprétations seront plus largement détaillés dans les paragraphes qui suivent.

Notons néanmoins qu'il peut exister, dans certains cas, une confusion entre un défaut de type « peau de requin » très marqué et un défaut hélicoïdal peu marqué. Rappelons que le défaut de « peau de requin » est un défaut surfacique : les craquelures observées impliquent généralement une variation du diamètre de l'extrudat de l'ordre de 1% au maximum. La morphologie des défauts de volume reste très différente puisqu'ils présentent des variations de diamètre plus conséquentes, d'une valeur de 10% ou plus [1]. Malgré ces différences significatives de morphologies, il existe une identification des défauts beaucoup plus sûre. Elle consiste à situer l'apparition de l'instabilité sur une courbe d'écoulement, en amont ou en aval de la zone oscillante, par exemple.

I. 1. 7. Le défaut « chaotique »

A très fort débit, l'écoulement devient chaotique et la forme de l'extrudat est très perturbée.

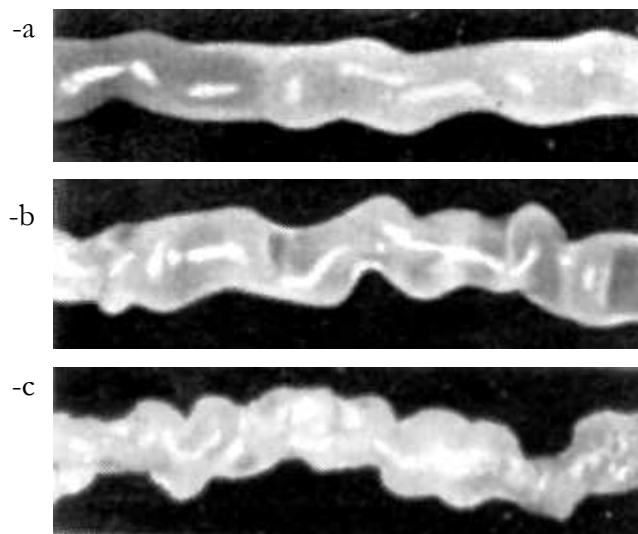


Fig. 1. 10 : Aspect d'un extrudat affecté du défaut chaotique, pour un PEBD, à 175 °C. (a) : $\dot{\gamma}_{app} = 136 \text{ s}^{-1}$, (b) : $\dot{\gamma}_{app} = 429 \text{ s}^{-1}$, (c) : $\dot{\gamma}_{app} = 1357 \text{ s}^{-1}$ [5].

De même que pour le défaut hélicoïdal, le phénomène et ses interprétations seront plus largement détaillés dans les paragraphes qui suivent.

Par ailleurs, il est important de noter qu'une superposition de défauts de type surfaciques et volumiques existe dans certains cas [16]. Des polymères fortement enchevêtrés peuvent présenter, en plus de l'instabilité volumique, un défaut de type « peau de requin » ou un phénomène de glissement. Si la masse moléculaire est suffisamment faible, de légères craquelures viennent se superposer aux distorsions volumiques qui sauront, à elles seules, créer la forme exacte de l'extrudat. Pour des masses moléculaires plus importantes, de profondes rainures s'organisent autour des distorsions volumiques et peuvent ainsi affecter l'extrudat d'une forme plus élaborée et complexe.

I. 2. Visualisations de l'écoulement dans la région d'entrée de la filière

La visualisation d'un écoulement à l'entrée d'un capillaire a été mise en place il y a plus de quarante ans par l'utilisation de réservoirs et de convergents transparents [20, 21, 22]. Très vite, des perturbations de l'écoulement amont ont pu être clairement identifiées et se sont imposées comme à l'origine des défauts de volume. Aujourd'hui, de nombreuses études sont venues confirmer ces conclusions. Il est admis que les instabilités volumiques sont initiées à l'entrée de la filière d'extrusion [1-3].

L'observation de l'écoulement en amont de la contraction s'est donc imposée pour tenter de comprendre les mécanismes liés à l'initiation et au développement des instabilités volumiques. On s'est attaché, au cours des cinquante dernières années, à caractériser deux grandeurs essentielles à la description d'un écoulement : la répartition des contraintes d'une part et le champs des vitesses d'autre part. Des méthodes optiques de plus en plus précises ont pu être développées à cet effet. Notons cependant qu'une visualisation de l'écoulement amont est à distinguer des observations d'extrudats en sortie de filière puisque ces derniers sont tributaires des conditions d'écoulement en aval de la contraction.

I. 2. 1. Visualisation de lignes de courant dans l'écoulement amont : utilisation de traceurs

❖ Caractéristiques de l'écoulement amont en régime stable

L'utilisation de traceurs fluorescents ou opaques (suspension de particules de noir de carbone [22], carbure de silicium [23]) permet l'observation de lignes de courant en amont de la contraction.

White [24] déclare que les écoulements dans la région d'entrée de la filière sont tributaires des propriétés viscoélastiques du polymère fondu. Néanmoins, pour de faibles débits d'écoulement, le polymère se comporte comme un fluide newtonien. L'espace entier du réservoir est occupé par un même écoulement. Pour des débits plus importants, le comportement du fluide viscoélastique dépend très fortement de la nature du polymère fondu.

En effet, dès les années 1960, on montre que l'écoulement en amont d'une contraction est très différent suivant que le polymère extrudé est de type linéaire ou branché. De nombreuses visualisations de la région d'entrée de la filière [20, 21, 22] révèlent que, pour les polymères linéaires, l'écoulement dans un convergent à fond plat occupe tout l'espace disponible.

A l'inverse, les polymères branchés présentent, pour des débits suffisamment importants, des recirculations en coin appelées vortex. On distingue donc un écoulement principal conique en forme de « verre à vin » qui s'achemine dans l'orifice et un écoulement secondaire piégé de part et d'autre de l'écoulement principal. Avec le débit d'écoulement, il apparaît que les écoulements secondaires se développent. On observe une croissance de la taille des vortex [20, 24, 25], comme on peut l'observer sur les clichés de la figure 1. 11 :

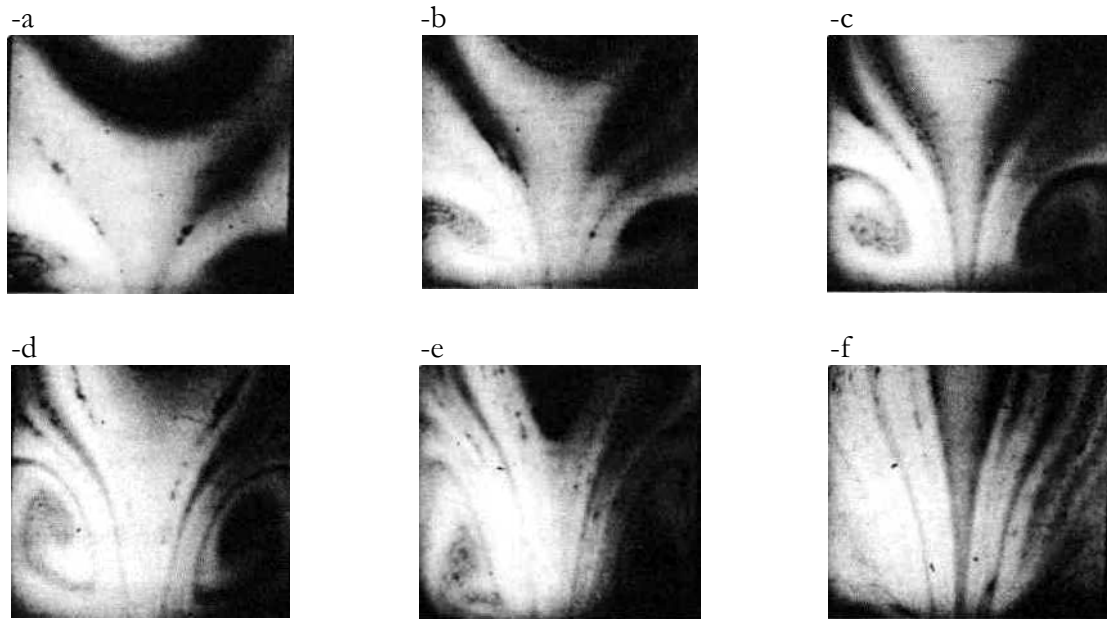
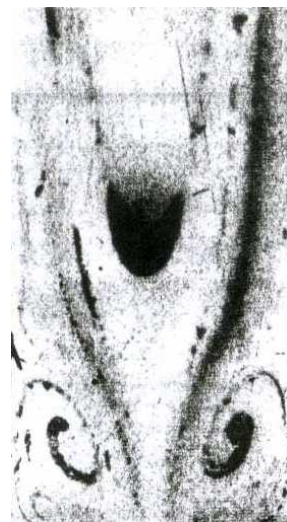


Fig. 1. 11 : Visualisation de l'écoulement d'entrée d'un PEBD à 180 °C, pour des taux de cisaillement de 7 s^{-1} (a), 17 s^{-1} (b), 34 s^{-1} (c), 66 s^{-1} (d), 294 s^{-1} (e), 561 s^{-1} (f) [25].

Les figures suivantes présentent la forme de l'écoulement d'entrée de divers polymères, pour un même taux de cisaillement apparent :



Polyéthylène basse densité



Polyéthylène haute densité



Polystyrène

Fig. 1. 12 : Visualisation de l'écoulement d'entrée d'un PEBD, d'un PEHD et d'un PS, pour un taux de cisaillement apparent de 150 s^{-1} [20].

Ballenger et al. [20] ont caractérisé la nature de l'écoulement d'entrée en mesurant l'angle α qui existe entre la limite de l'écoulement principal et celle des recirculations. Cette quantification est illustrée à la figure 1. 13.

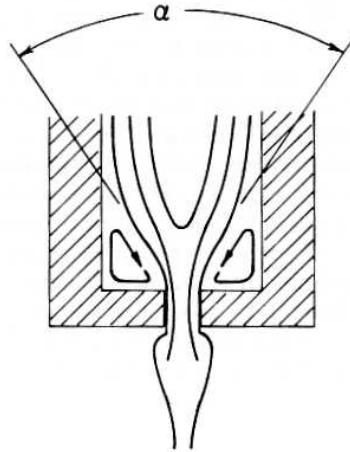


Fig. 1. 13 : Angle α caractéristique de l'écoulement principal [20].

Comme on peut l'observer sur les figures 1. 12, les angles mesurés ont une valeur de 30 à 50° pour le PEBD [20, 21], 90° pour le PS [20] et 130° pour le PEHD dont les aires stagnantes sont de très petite taille [20, 21]. Plus l'angle est important, moins l'écoulement dans la région d'entrée a tendance à se canaliser.

Alors que le polypropylène ne possède pas de recirculations de fluide dans les coins de la contraction [25], on observe que le polystyrène possède de larges vortex. Ces deux matériaux sont pourtant tous les deux de structure moléculaire linéaire : une fois de plus, il reste très hasardeux de généraliser la forme de l'écoulement amont en fonction de la nature du polymère.

Une littérature plus récente concernant le cas de silicones branchés et linéaires décrit deux formes de vortex différentes [26]. On distingue des vortex dits « en coin », éloignés de la contraction et caractéristiques de fluides à comportement newtonien. Par ailleurs, on rencontre des vortex dits « de lèvres ». Ils se développent au bord de la contraction, pour des nombres de Weissenberg assez faibles ($We = 0.23$) et sont essentiellement caractéristiques des polymères de type branchés au comportement plus élastique.

En résumé, le premier type de vortex traduit le comportement visqueux du fluide alors que le second traduit la viscoélasticité du matériau considéré. Dans les deux cas, la taille de ces vortex augmente avec le débit imposé. Par ailleurs, ils peuvent momentanément coexister, avec les vortex « de lèvres » qui tendent à se développer avec le débit et à envahir l'espace initialement occupé par les vortex « en coin ». On assiste alors à la formation d'une seule aire de recirculation, développée à partir du bord de la contraction.

Les gommes silicones linéaires ne présentent pas de vortex « de lèvres », contrairement aux gommes branchées. A l'inverse, les huiles linéaires et branchées présentent toutes les deux la coexistence des deux types de vortex. Comme observé précédemment, le caractère « branché » ou « linéaire » du matériau ne suffit donc pas à classer la forme de l'écoulement amont.

❖ Interprétations rhéologiques et mécaniques du phénomène de recirculations

Bagley et Birks [21] associent le phénomène de vortex à l'élasticité du matériau.

Une expérience simple consiste à appliquer une pression donnée en amont de la filière, puis à relâcher subitement cette pression de sorte qu'elle devienne nulle. Pour un PEBD, la photo 1. 14. a montre le réservoir de la filière pour une pression imposée de 1 MPa. Comme observé par Ballenger et al. [20], l'écoulement présente de larges recirculations. Les figures suivantes montrent

l'évolution des lignes de courant, vingt trois secondes et treize minutes respectivement après avoir appliqué une pression nulle :



Fig. 1. 14 : Visualisation de l'écoulement d'entrée d'un PEBD à 190 °C, pour une pression imposée de 1 MPa (a), et pour une pression imposée nulle, après 23 s (b), et après 13 min (c) [21].

Les deux dernières figures présentent une rupture des lignes de courant en amont de la contraction et témoignent d'une rétraction élastique du fluide. Bagley et Birks peuvent, à partir d'une mesure dimensionnelle et temporelle de ce retour élastique, estimer une énergie élastique stockée dans l'écoulement. Ils montrent que le phénomène de retour élastique (et donc l'énergie stockée élastiquement) est beaucoup moins conséquente pour un PEHD ne présentant que de très petites recirculations que pour un PEBD présentant des vortex de taille importante.

Par ailleurs, White [24] montre que l'angle α décroît fortement en fonction du rapport entre la perte de charge dans le convergent d'entrée et la contrainte de cisaillement à la paroi du capillaire. Rappelons que la perte de charge due à l'élongation est prédominante par rapport à celle due au cisaillement. Le rapport entre la pression d'entrée et la contrainte de cisaillement est directement proportionnel au rapport entre contraintes normales et contraintes de cisaillement. Ce rapport est l'expression du nombre de Weissenberg. Ainsi, White note que des vortex de taille importante supposent des nombres de Weissenberg importants.

En outre, Nakamura et al. [27] ont montré sur des solutions de polyacrylamide et d'hydroxyméthylcellulose de viscosité proche mais d'élasticité différente que la taille des recirculations augmente avec l'élasticité du matériau.

De plus, la taille et la forme des vortex sont souvent interprétées en terme de propriétés élongationnelles du fluide. White [24] déclare que, pour des débits d'écoulement suffisamment élevés, le caractère non-newtonien et viscoélastique du fluide devient plus prononcé. Il se traduit en l'occurrence par une viscosité élongationnelle non-linéaire et par des contraintes normales : le champs de contraintes se développe différemment. Une étude relative à des solutions diluées de polymères de fortes masses moléculaires, communément appelées « fluide de Boger » [28], conforte ces idées. Il apparaît que les fluides présentent une taille de vortex d'autant plus importante qu'ils possèdent un écart de la viscosité élongationnelle à la viscosité troutonienne élevé.

❖ Caractéristiques de l'écoulement amont en régime instable

Les études présentées ci-après concernent des écoulements axisymétriques, exclusivement.

Plusieurs études sur la visualisation des lignes d'écoulement par suivi de traceurs montrent qu'une déstabilisation de l'écoulement amont peut adopter une forme de spirale [20, 22]. Ce mouvement circulaire de l'écoulement d'entrée conduit à la formation de distorsions hélicoïdales en sortie de filière.

On peut observer ci-dessous les oscillations d'entrée telles que, d'une photo à l'autre, la ligne d'écoulement centrale a oscillé à travers la région d'entrée :

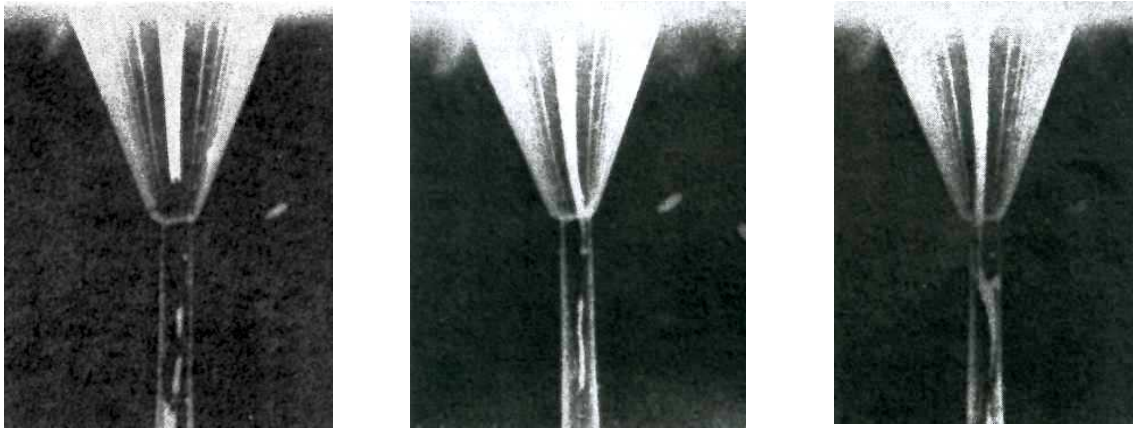


Fig. 1. 15 : Mouvements circulaires de l'écoulement principal à travers la région d'entrée axisymétrique pour un PEBD, à 190 °C [22].

Si l'on augmente le taux de cisaillement apparent, l'amplitude de ce mouvement augmente. C'est le cas du polystyrène étudié par Ballenger et White [20, 25] mais aussi d'un PEHD étudié par Oyanagi [29].

Pendant la déstabilisation de l'écoulement d'entrée d'un PEBD, Bagley et Birks [21] observent un écoulement opposé à l'écoulement principal. Ils constatent qu'un phénomène de retrait élastique de l'écoulement en amont de la contraction se met en place. Il se traduit par une rupture des lignes de courant qui pénétraient initialement dans l'orifice et qui remontent légèrement en amont. Sachant que le diamètre de l'orifice est de 10 mm, ils mesurent un retour élastique de l'ordre de 2.5 mm. Durant ce laps de temps, ils observent que de la matière issue des recirculations s'introduit violemment dans la contraction.

Les observations rapportées par Tordella [4] et White [24] convergent vers les mêmes conclusions. Tordella ajoute que le défaut hélicoïdal s'explique par la propagation circulaire continue d'un site unique. La déstabilisation de l'écoulement principal y est initiée par les déchargements circonférentiels de vortex.

Si plusieurs hélices se superposent dans le volume de l'extrudat, on suppose que plusieurs sites apparaissent de façon alternative, autour du diamètre du capillaire [4]. Bergem [30] décrit le cas du PEHD comme pouvant présenter des mouvements elliptiques de l'écoulement principal. Il s'exprime en sortie de filière par un extrudat affecté d'une spirale de section elliptique.

Pour des débits d'extrusion plus importants, on assiste à la rupture de ce mouvement de spirale avec des perturbations aléatoires de l'écoulement principal. On observe en sortie de filière le développement du défaut chaotique. Ce phénomène de « turbulence » décrit comme chaotique est observé pour les PDMS, branchés ou non [23]. On observe même des mouvements de particules alternativement figés, fortement accélérés ou décélérés ou encore légèrement accélérés dans le sens contraire à l'écoulement établi (surtout sur l'axe de symétrie).

Le cas du défaut chaotique s'explique mal et White, à travers sa publication, s'interroge [24] : est-ce un développement plus sévère des perturbations circonférentielles observées ou est-ce une instabilité à part entière, sans aucune connexion avec le défaut hélicoïdal ?

I. 2. 2. Répartition des contraintes dans l'écoulement amont : la biréfringence d'écoulement

L'observation de clichés de biréfringence avant et après l'initiation du défaut volumique a fait l'objet de nombreux travaux [5, 12, 31, 32]. On distingue une perte de symétrie très nette de l'écoulement amont qui se traduit par une dissymétrie des isochromes :

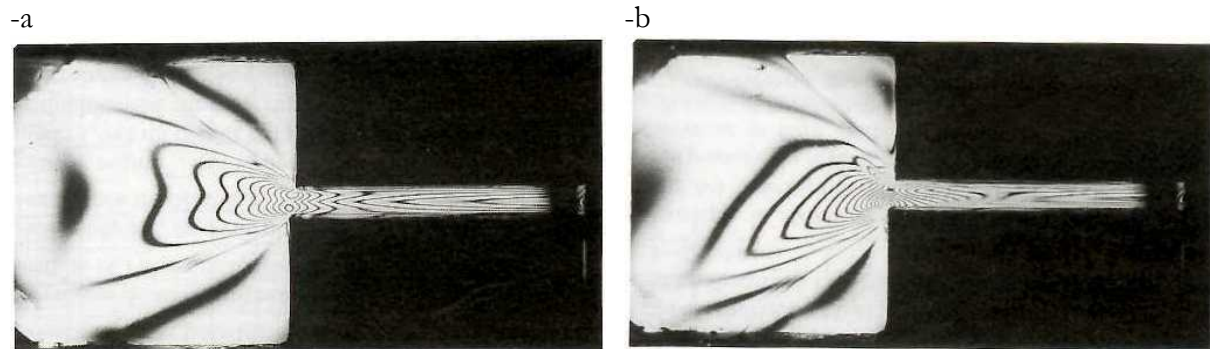


Fig. 1. 16 : Clichés de biréfringence associés à l'écoulement plan d'un polystyrène à 200 °C, lors d'un régime stable (a) et d'un régime instable (b) [5].

On observe très bien la propagation de l'instabilité le long du capillaire par la perte de symétrie des isochromes dans le canal d'écoulement. Au fur et à mesure du développement de l'instabilité, cette dissymétrie s'accroît, avec des écarts à l'axe de symétrie de plus en plus amplifiés. La perte de symétrie de ces franges dans la région transverse de l'écoulement traduit une perte d'homogénéité des contraintes très prononcée dans la direction perpendiculaire à l'écoulement.

De plus, la perte de symétrie de l'écoulement s'accompagne de l'apparition et de la disparition alternatives de nombreuses franges. La disparition de franges peut s'expliquer comme une relaxation des contraintes impliquées dans l'écoulement et suggère le passage du polymère à travers l'orifice. L'apparition de franges suggère au contraire que le matériau est soumis à de plus importantes contraintes, l'empêchant de se déplacer ou même provoquant un écoulement contraire à l'écoulement principal.

Goutille et al. [31] ont étudié un SBR linéaire qui présente, en sortie de filière plate, un développement de vagues régulières dans le volume, pour un débit critique donné. Ce défaut observé en écoulement plan est l'équivalent du défaut hélicoïdal. En amont de la contraction et à l'apparition de l'instabilité, ils observent une pulsation, dans la direction de l'écoulement, de l'isochrome d'ordre maximal le long de l'axe de symétrie. L'isochrome se déplace alternativement pour laisser place à la création d'une autre frange d'ordre supérieur (ou usurper la place). Cette observation confirme le fait que le déclenchement de l'instabilité aurait lieu à proximité du plan de contraction.

Une étude locale de l'évolution des contraintes au cours du temps à l'apparition et au développement de l'instabilité chaotique a été mise en place par Legrand et Piau [32] sur un PDMS. Les éléments du montage expérimental consistent en un faisceau laser suivi d'un polariseur linéaire, d'un modulateur photo-élastique, d'une lame quart d'onde, d'un polariseur circulaire et d'une photodiode mesurant l'intensité lumineuse transmise. Le signal de la photodiode est alors traité puis filtré, amplifié et analysé. Les mesures ont été effectuées

principalement dans la proximité de la contraction, soit juste en amont (points A, B et F), soit juste en aval (points C, G, H, D, I et E).

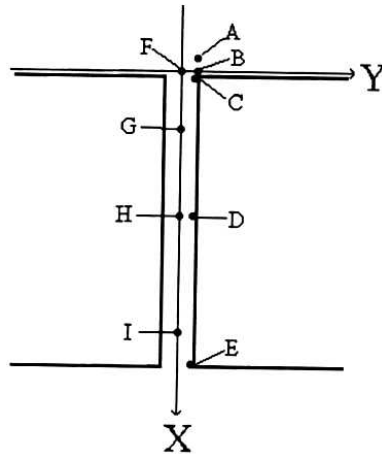


Fig. 1. 17 : Localisations des points de mesure dans l'écoulement [32].

Ainsi, à l'apparition de l'instabilité d'entrée, des oscillations de contraintes ont été observées. En aval de la contraction, pour les points G, H et I situés sur l'axe de symétrie, des fluctuations de contraintes de cisaillement sont détectées, attestant d'une perte de symétrie de l'écoulement principal. Le point F, situé à 0.1 mm en amont de l'orifice, ne présente aucune fluctuation de contrainte de cisaillement. Ainsi, contre toute attente, ces fluctuations de contrainte sont localisées dans le canal d'écoulement, alors que dans la région d'entrée correspondant aux points A et F, aucune fluctuation de contrainte n'est détectée.

Seul le point B, situé à 0.1 mm en amont de l'écoulement, à proximité de la singularité géométrique, présente des oscillations de contraintes. Ces oscillations s'avèrent moins importantes que dans le cas du point C situé lui aussi à proximité de la singularité, mais juste à hauteur de la contraction.

L'étude de biréfringence est complétée par l'observation cinématique précise de particules au sein de l'écoulement. On note que la naissance de l'instabilité se traduit par de petites fluctuations de vitesse des particules le long des lignes de courant. Ce qui apparaît singulier à travers cette étude est que ces oscillations de vitesse sont observées essentiellement au niveau des parties latérales de l'écoulement et non en son centre. De plus, les oscillations de contrainte sont précisément et initialement détectées dans la zone latérale de la contraction, près des coins. Visiblement, le site d'initiation de l'instabilité serait situé dans une région très proche des singularités de l'orifice, à partir de l'orifice ou légèrement en aval.

I. 2. 3. Répartition du champ de vitesse dans l'écoulement amont : la vélocimétrie

L'observation de la cinématique d'un polymère fondu peut s'avérer très utile dans la caractérisation des instabilités d'entrée et dans la compréhension des mécanismes impliqués.

❖ Caractéristiques de l'écoulement amont en régime stable

La vélocimétrie laser-Doppler permet la mesure précise de vitesses locales dans l'écoulement. Il est possible de parcourir le réservoir d'une filière et de mesurer, en chaque point, deux composantes de vitesse indispensables à la construction d'un champ de vitesse dans un plan donné. Wassner et al. [33] sont parmi les premiers à s'être intéressés à la mesure de vitesses au sein de recirculations. Les résultats qu'ils obtiennent sont présentés à la figure 1. 18 :

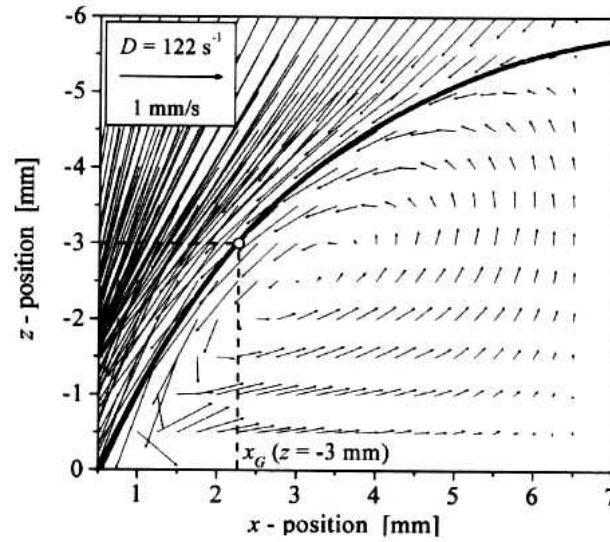


Fig. 1. 18 : Vecteurs de vitesse mesurés dans une recirculation, lors de l'écoulement dans une contraction brusque d'un PEBD à 150 °C. z est la direction de l'écoulement et x la direction transverse. La position zéro correspond à la contraction [33].

On constate que les vitesses mesurées à l'intérieur de l'écoulement secondaire sont très faibles par rapport à celles rencontrées dans l'écoulement principal. Une estimation de la frontière entre les deux écoulements apparaît sur la figure (ligne surlignée). Elle s'avère beaucoup plus précise que celle obtenue avec l'aide de traceurs colorés.

❖ Caractéristiques de l'écoulement amont en régime instable

Le système de PIV (Particle Image Velocimetry) permet la mesure instantanée de champs de vitesses dans un domaine d'écoulement (en l'occurrence dans un plan de symétrie). Il est également possible de mesurer leur évolution temporelle dans des conditions instationnaires d'écoulement.

Dans le cas de PDMS, Nigen et al. [34, 35] se sont placés dans des conditions d'écoulement amont instables pour lesquelles on observe des distortions régulières sur l'extrudat (figure 1. 19). Ils ont mesuré, au cours du temps, l'évolution du champ de vitesse dans le convergent axisymétrique :

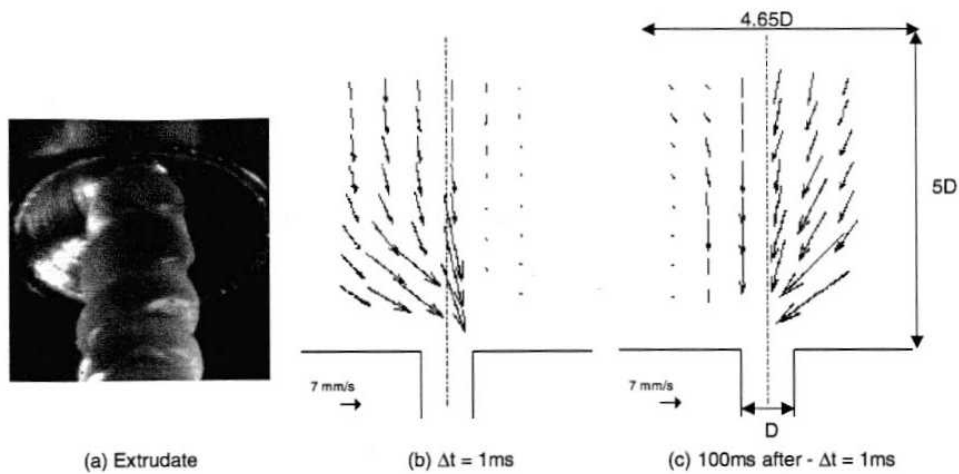


Fig. 1. 19 : Champs de vitesse mesuré en amont de la contraction, pour une gomme silicone linéaire extrudée à 23 °C et pour une pression imposée de 0.6 MPa [35].

On note une importante dissymétrie des « vecteurs vitesse » représentés, avec des accélérations du fluide tantôt d'un côté de la contraction, tantôt de l'autre. Par exemple, si l'on se place à une distance de deux fois et demi le diamètre en amont de la contraction, et à une distance de 0.82 mm de l'axe de symétrie, on mesure des fluctuations de vitesse pouvant atteindre une valeur de $\pm 100\%$ autour de la vitesse moyenne mesurée sur une période.

Dans les mêmes conditions d'écoulement, on note sur l'axe de symétrie des fluctuations de vitesse moins importantes, de l'ordre de $\pm 40\%$. Si l'on réduit le débit d'écoulement, il apparaît que l'amplitude à la fois des distorsions en sortie et des dissymétries dans le champs de vitesse décroît. La dissymétrie de l'écoulement d'entrée semble être initiée à proximité de la contraction, à moins de quatre fois le diamètre de filière, en amont de la contraction et sur l'axe de symétrie.

I. 3. Caractérisations de l'instabilité volumique : courbes d'écoulement et fréquences associées à l'instabilité

I. 3. 1. Courbes d'écoulement associées à l'instabilité

Les courbes d'écoulements associées aux polymères de type « ramifiés » présentent une rupture de pente correspondant à la naissance de l'instabilité de volume. Cette constatation a été largement rapportée par de nombreuses études relatives à des polyéthylènes basse densité [4, 36], des polypropylènes [19, 37], des copolymères SBR [38] ou encore des polyéthylènes haute densité [20, 21]. Piau et al. [26] et Nigen et al. [35] ont observé le même phénomène sur des polydiméthylsiloxanes.

On peut observer sur la figure 1. 6, la présence d'une légère discontinuité de pente sur la courbe d'écoulement apparente d'un PEBD, dans le cas du rapport L/D nul.

Le changement de pente ne s'accompagne pas d'une discontinuité sur la courbe d'écoulement. Il est d'autant plus prononcé que la filière est courte, filière pour laquelle les effets d'entrée sont moins « masqués » par la perte de charge due au capillaire [4].

En écoulement capillaire, la contrainte de cisaillement à la paroi s'écrit :

$$\tau_w = \frac{PR}{2(L + eR)} \quad \text{Eq. 1. 1.}$$

avec R et L le rayon et la longueur du capillaire, P la pression totale mesurée en amont de la contraction et e le facteur correctif issu des corrections de Bagley.

Si l'on trace l'évolution du facteur correctif e en fonction du taux de cisaillement apparent, on note un changement brutal de pente à l'apparition du phénomène d'instabilité volumique [4], comme en témoigne la figure suivante :

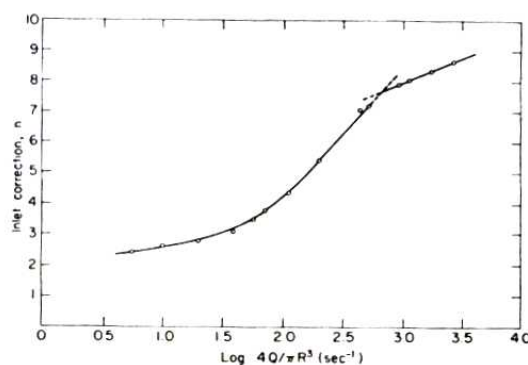


Fig. 1. 20 : Variation du facteur correctif e (noté n) en fonction du taux de cisaillement apparent pour un PEBD à 190°C [4].

Il varie d'une valeur de 5 pour de faibles débits à des valeurs variant de 6 à 9 au niveau du débit critique. Au delà de ce débit, la croissance de e est relativement faible.

Selon Tordella [36], l'apparition de distorsions en sortie de filière s'accompagne de très légères fluctuations soit du taux de cisaillement apparent, soit de la contrainte (si l'on effectue un contrôle en débit ou en pression respectivement). Ainsi, pour une contrainte fixée, chaque perturbation de l'écoulement amont créant une distorsion hélicoïdale de l'extrudat résulte en l'augmentation de 10 à 20 % du débit d'écoulement. Ballenger et White [20, 25] mesurent de légères fluctuations de pression pour un PS et pour un PEHD, de l'ordre de 2%.

On suppose aisément que ces fluctuations de pression (ou débit) sont la conséquence directe de la déstabilisation de l'écoulement d'entrée. Elles ne sont en aucun cas comparables aux importantes oscillations de pression propres au développement du défaut oscillant. De plus, il est dangereux de comparer l'importance de ces fluctuations d'un matériau à l'autre car elles dépendent fortement de l'état de développement du défaut de volume. On imagine que la transition du défaut hélicoïdal vers le défaut chaotique s'accompagne de variations de pression plus accentuées.

I. 3. 2. Fréquences de l'instabilité

Les fréquences des instabilités volumiques « périodiques », comme l'instabilité hélicoïdale, sont quantifiables. La mesure est généralement effectuée soit à l'aide de stroboscopes en sortie de filière, soit à partir des méthodes de visualisation de l'écoulement amont.

Il a été démontré que la fréquence de déclenchement de l'instabilité est conservée le long de la filière d'écoulement [23]. La fréquence mesurée en amont de la contraction par l'utilisation de traceurs est la même que celle mesurée à partir des distorsions d'extrudat. Des travaux plus récents ont pu corrélérer la fréquence des fluctuations régulières du champ de vitesse en amont de la contraction (grâce à la technique de PIV) à la fréquence de l'instabilité volumique en sortie de filière [35].

Petrie et Denn [3] rapportent que la fréquence de l'instabilité se comporte différemment d'un polymère de type « branché » à un polymère de type « linéaire ». Pour ce dernier, la fréquence de l'instabilité n'évolue que très peu avec le débit d'écoulement. Pour les polymères de type « ramifiés », on observe que la fréquence de déclenchement du défaut est très faible et augmente rapidement avec le débit imposé. Il peut exister un facteur 10 entre la fréquence d'initiation et la fréquence associée à des débits plus importants.

Nigen et al. [35] ont utilisé six polydimethylsiloxanes différents (gommes ou huiles silicones branchées ou linéaires) et ont mesuré la fréquence de leur instabilité hélicoïdale, à son apparition. Ils montrent que la variation en coordonnées logarithmiques des fréquences mesurées est une fonction décroissante linéaire de la masse moléculaire en poids M_w . La pente est estimée à -3.5.

Les mêmes auteurs ont montré que la fréquence était, pour les mêmes conditions d'écoulement, de l'ordre de 405 Hz pour une huile silicone linéaire, 15 et 5 Hz pour une gomme linéaire et branchée, respectivement. Précisons que, dans cette étude, les gommes branchées et linéaires possèdent la même masse ainsi que la même distribution de masse, ce qui rend la comparaison possible. Ainsi, non seulement la fréquence aurait tendance à diminuer avec la viscosité du fluide, mais elle serait plus élevée avec un polymère linéaire plutôt qu'avec un branché. Bagley et Birks [21] observent eux aussi que la fréquence des oscillations de l'écoulement amont est plus élevée pour un PEHD que pour un PEBD.

De plus, Piau et al. [23] observent que lorsque le débit d'écoulement augmente, et dans le cas d'huile silicone branchée exclusivement, des modes additionnels viennent se greffer au mode principal caractéristique de l'instabilité hélicoïdale. On observe que l'extrudat perd son axisymétrie et devient de plus en plus perturbé par de multiples distorsions. En outre, il est fréquent d'observer, dans le cas de solutions et pour des débits suffisamment importants, des modes additionnels qui se greffent au mode de pulsation principal [27].

Enfin, aucun sens particulier du défaut hélicoïdal n'a pu être mis en évidence. La morphologie de l'extrudat obtenu présente aléatoirement une hélice à droite ou à gauche [16, 23]. On suppose que le sens de l'hélice est déterminé par d'éventuelles impuretés de l'écoulement, une qualité surfacique des parois aléatoire ou de possibles perturbations caractéristiques du phénomène d'instabilité étudié.

I. 4. Influence des conditions d'écoulement sur l'instabilité volumique

A travers ce paragraphe, on n'évoquera pas l'influence du matériau de la filière : Piau et al. [23] ont démontré qu'il n'existait pas d'effet notable de ce paramètre sur le déclenchement du défaut.

I. 4. 1. Température d'écoulement

La température d'écoulement tend à repousser l'instabilité volumique à des taux de cisaillement supérieurs [3, 4, 19].

Pour les polystyrènes étudiés par Spencer et Dillon [39] et pour les polypropylènes étudiés par Kazatchkov et al. [37] et Baik et Tzoganakis [19], il n'existe aucune influence de la température sur la contrainte de cisaillement critique. Tordella [4] note une légère augmentation de cette même contrainte avec la température pour des PS et PEBD.

Néanmoins, il est généralement admis que l'influence de la température sur la contrainte de cisaillement critique reste négligeable ou inexistante.

I. 4. 2. Écoulement axisymétrique ou écoulement en filière plate

Les polymères donnant lieu, en écoulement axisymétrique, à d'importantes distorsions hélicoïdales présentent de larges et régulières rides en sortie de filière plate [1].

La visualisation d'un extrudat en sortie de filière plate est souvent gênée par la superposition d'un deuxième phénomène indépendant que constituent les effets de bords. Ainsi, il n'est pas toujours évident de faire la distinction entre des rides régulières provenant du fait que l'écoulement est plus rapide au centre de la filière et des irrégularités de volume qui sont l'expression même d'un véritable défaut volumique.

Quelques auteurs se sont attachés à comparer les conditions de déclenchement obtenues en écoulement plan et axisymétrique [4, 40, 41]. La comparaison de ces études mène à de nombreuses divergences entre les auteurs et les divers polymères étudiés.

En fait, cela n'a pas beaucoup de sens de comparer des configurations d'entrée très différentes, d'autant plus que les rapports de contraction entre le réservoir et le canal d'écoulement ne sont pas forcément équivalentes d'une géométrie à l'autre. Il est pratiquement impossible de comparer l'initiation du défaut, d'une configuration plane à une configuration axisymétrique.

I. 4. 3. La longueur de filière

❖ Déclenchement du défaut

Tout d'abord, notons que la présence d'un capillaire n'est pas nécessaire pour que l'instabilité volumique se développe. Les filières orifice (telles que le rapport L/D soit quasi nul) présentent à la fois le phénomène d'instabilité hélicoïdale et chaotique [5].

La contrainte de cisaillement critique semble indépendante de la longueur d'écoulement comme l'ont montré Ramsteiner sur un polystyrène [42] ou encore Baik et Tzoganakis [19] sur un polypropylène.

A l'inverse, Kazatchkov et al. [37] montrent sur des polypropylènes que le taux de cisaillement apparent ainsi que la contrainte critiques diminuent avec la longueur d'écoulement pour des rapports L/D supérieurs à 40.

Contrairement aux auteurs précédents, Goutille et Guillet [38] montrent sur des SBR que le taux de cisaillement apparent critique augmente avec le rapport de longueur L/D . De même, Ballenger et al. [20] montrent pour un PEBD que le taux de cisaillement critique augmente avec le rapport L/D . Ils montrent par ailleurs que la taille des recirculations observées pour un PEBD et un PS augmente avec la longueur de filière [25]. Si les recirculations jouent un rôle déclencheur dans l'instabilité volumique, cette dernière constatation va à l'encontre de l'initiation prématurée observée avec des rapports de longueur L/D importants (PEBD) ou même de l'absence de dépendance du déclenchement à la longueur de filière (PS).

La divergence des observations apportées par la littérature peut s'expliquer par le fait que la longueur d'écoulement tend à modifier l'aspect de l'instabilité, qui est en général moins franche avec des filières longues qu'avec des filières plus courtes.

❖ Sévérité du défaut

La sévérité des défauts observés est un critère assez mal défini dans la littérature. D'après la plupart des auteurs, elle est relative à l'aspect plus ou moins dégénéré de l'écoulement en sortie de filière et s'appuie malheureusement sur des estimations visuelles très subjectives. On relève de nombreuses divergences au sein de la littérature. Le manque de définition du terme « sévérité » tend à rendre les études difficilement comparables.

Pour un polypropylène, Kasatchkov et al. [37] notent que la sévérité du défaut volumique augmente avec la longueur de filière. A l'inverse, Baik et Tzoganakis [19] montrent, également sur un PP, que le défaut hélicoïdal rencontré devient moins accentué avec une filière longue :

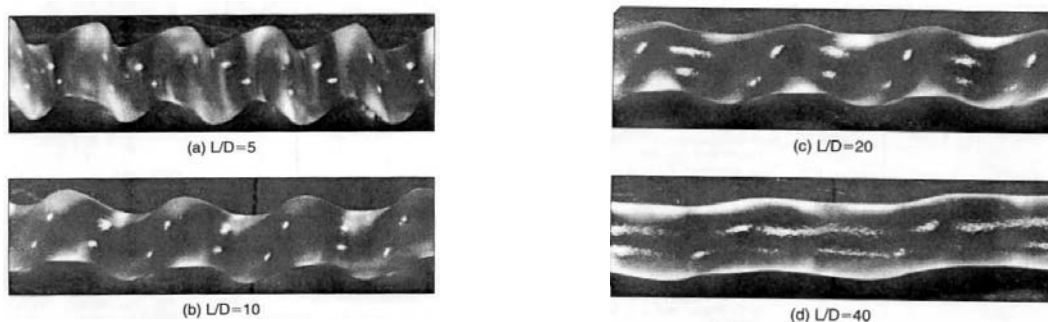


Fig. 1. 21 : Aspect d'extrudats de polypropylène extrudé à 190 °C et à 2000 s⁻¹, pour différents rapports L/D [19].

Malgré tout, pour les polymères de type « branchés », de nombreux auteurs [4, 5, 6, 20, 25, 38, 42] s'accordent à penser que la sévérité des distorsions d'extrudat diminue avec la longueur de filière utilisée. Les instabilités volumiques apparaissent comme initiées à l'entrée de la filière et s'amortissant lentement le long du capillaire [3].

Selon Tordella [4], la baisse de la sévérité du défaut avec la longueur d'écoulement peut s'expliquer par une relaxation progressive du polymère fondu lors de son transit dans le capillaire. En effet, la biréfringence d'écoulement montre clairement, par la décroissance de l'orientation moléculaire le long du capillaire, le phénomène de relaxation de contraintes.

Dans le cas des polymères de type « linéaires », on reporte l'effet inverse de la longueur sur l'extrudat [6, 20] : la sévérité du défaut volumique augmente avec le rapport L/D . Les avis restent néanmoins assez controversés à ce sujet.

Rappelons que les travaux ne s'appuient jamais sur une quantification précise des distorsions volumiques et qu'il est très difficile de se prononcer à ce sujet. On peut imaginer, au regard de la majorité des publications, que l'influence de la longueur sur la morphologie d'extrudat peut se résumer de façon générale à la séquence de photos présentées figure 1. 21.

I. 4. 4. L'angle d'entrée de la filière

❖ Déclenchement du défaut

Ballenger et al. [20] montrent, pour un PEHD, que le taux de cisaillement apparent critique s'élève à 4230 s^{-1} dans le cas d'une contraction brusque contre 13100 s^{-1} dans le cas d'une entrée conique de demi-angle 45° .

Ramsteiner [42] observe lui aussi que, pour un polystyrène, la contrainte de cisaillement critique augmente avec l'utilisation d'un convergent à angle d'entrée plus faible.

Metzner et al. [43] ont utilisé des filières de demi-angle d'entrée variant de 90° à 10° sur un polyéthylène basse densité. Peu d'effets ont été observés quant au déclenchement de l'instabilité de volume, pour des angles compris entre 20° et 90° . Cependant, le cas du convergent de 10° est apparu très singulier car il permet de multiplier par un facteur trois le taux de cisaillement apparent à l'apparition du défaut par rapport à celui obtenu avec une géométrie de type « fond plat ».

D'autres auteurs montrent que l'effet de l'angle de convergent est très faible voire inexistant. Ainsi, Den Otter [41] a étudié le comportement de polyéthylènes et polydiméthylsiloxanes et n'a pas démontré d'effet notable de l'angle d'entrée sur l'initiation de l'instabilité, en comparant deux filières de demi-angle de convergent de 30° et 90° .

D'autres travaux ont été menés sur des PEBD par Bagley et Schreiber [22]. Les figures suivantes montrent que le déclenchement du défaut aurait lieu pour des pressions critiques de 11.7 et 9 MPa pour des convergents de demi-angle 30° et 90° respectivement.

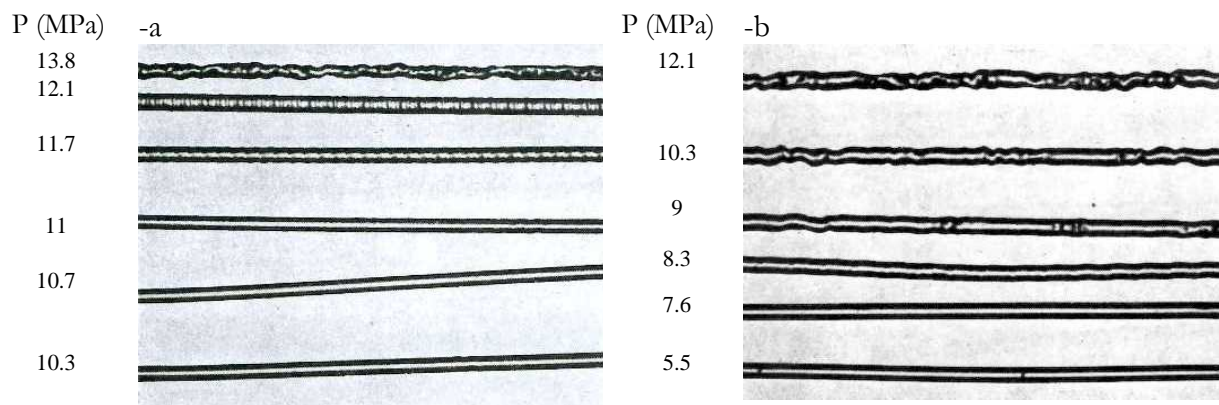


Fig. 1. 22 : Aspects d'extrudats de PEBD extrudé à 190 °C, avec une filière à entrée conique de demi-angle 30° (a) et à entrée plate de demi-angle 90° (b) [22].

L'observation de l'apparition du défaut est discutable d'après les photos d'extrudats présentées. Les auteurs précisent que le déclenchement du défaut s'opère pour une pression de 9 MPa alors que l'extrudat relatif à la pression de 8.3 MPa semble déjà affecté d'un léger défaut (figure 1. 22. b).

Par l'observation de l'écoulement amont, ils montrent qu'en réalité la déstabilisation de l'écoulement dans la région d'entrée survient pour les mêmes niveaux de pressions et de contraintes de cisaillement, quel que soit l'angle du convergent. Dans le cas du convergent conique, cette contrainte possède une valeur égale à la contrainte de cisaillement critique obtenue avec le convergent de type « fond plat ».

En conséquence, il semble important de rappeler que le débit ou la contrainte critique peuvent s'avérer légèrement différents d'une expérience à l'autre, dans le sens où une instabilité détectée au sein de l'écoulement amont peut présenter en sortie de filière un extrudat sans aucune distorsion apparente. C'est le cas essentiellement des convergents de type conique [22]. Beaucoup de publications manquent de précision à ce sujet et peuvent mener à des divergences dans les diverses conclusions.

En conclusion, les nombreux résultats présentés prouvent que, comme dans le cas de la longueur d'écoulement, il semble ne pas exister de règles précises auxquelles obéisse le déclenchement de l'instabilité. Chaque polymère semble répondre différemment à la configuration imposée à l'entrée du convergent. Malgré tout, il apparaît de façon assez générale que les angles faibles, lorsqu'ils influent sur l'apparition du défaut, tendent à repousser l'instabilité à des taux de cisaillements supérieurs.

❖ Sévérité du défaut

Ballenger et al. [20] notent qu'avec une entrée conique de demi-angle 45°, un extrudat de PEHD est beaucoup moins perturbé d'apparence que dans le cas d'un convergent à fond plat utilisé dans les mêmes conditions d'écoulement. Ce résultat avait déjà été signalé par Tordella [4].

Par la visualisation de l'écoulement amont, beaucoup d'auteurs ont montré qu'avec l'utilisation d'angles faibles, les oscillations observées en amont de la contraction semblent d'amplitude moindre et de fréquence plus élevée [4, 20, 22]. L'amplitude des fluctuations dissymétriques des isochromes observées en biréfringence d'écoulement est réduite par l'utilisation de convergents d'angles plus faibles. Ceci se traduit en sortie de filière par un extrudat affecté de distorsions moins sévères.

On suppose qu'avec un angle de convergent restreint, la taille du réservoir est réduite, ce qui limite l'amplitude de la déstabilisation et augmente sa fréquence.

I. 4. 5. Utilisation de filtres d'entrée

Plusieurs travaux ont été mis en œuvre au cours des dernières décennies pour modifier le conditionnement du polymère fondu dans la région d'entrée. Ils consistent soit à modifier la forme d'entrée de la filière en jouant sur l'angle du convergent, comme nous venons de le voir, soit à introduire des filtres poreux capables d'agir intrinsèquement sur l'écoulement du fondu.

Piau et al. [44] se sont attachés à décrire le comportement d'une huile silicone et d'un polyéthylène haute densité sous l'influence de filtres à l'entrée de la contraction. Deux types de filtres ont été utilisés, possédant deux taux de filtrage très différents. Un premier type de filtre consiste en un cylindre constitué de grilles métalliques superposées d'interstice 1.4 mm. Un deuxième, plus élaboré, se présente sous la forme d'une pastille cylindrique constituée de sphères de cuivre de diamètre maximal 600 μm .

Grâce au filtre de type « grille métallique », on constate que le défaut volumique est atténué, présentant une fréquence plus élevée mais d'amplitude moins importante. L'utilisation du deuxième filtre poreux permet d'éliminer l'instabilité qui est repoussée à des débits d'écoulement deux fois plus importants. L'extrudat associé est alors lisse et transparent, sans aucun phénomène de gonflement en sortie de filière.

De même, Goutille et Guillet [38] ont utilisé des filtres d'entrée de type « grille métallique » et observent que l'apparition de distorsions volumiques propres à deux SBR est repoussée à des taux de cisaillement plus élevés. Une mesure de la viscosité et des modules en rhéométrie oscillatoire et en rhéométrie capillaire, à partir d'extrudats obtenus avec et sans utilisation de filtres, montre que les propriétés rhéologiques restent inchangées d'une configuration à l'autre.

De plus, Goutille et Guillet [38] se sont intéressés à la visualisation, à l'aide de traceurs, de l'écoulement amont, avec et sans filtre et dans les mêmes conditions d'écoulement. On observe que les lignes de courant de l'écoulement amont sont stabilisées par la présence de filtres, permettant la réduction de l'amplitude de la déstabilisation. Il existe, selon Goutille et Guillet, une nouvelle organisation des déformations dues à l'élongation et au cisaillement. Le désenchevêtrement des chaînes à travers les filtres permettrait de modifier le champs de contraintes élongationnelles dans le convergent d'entrée [38, 44].

I. 5. Influence des propriétés moléculaires et rhéologiques du polymère

Cette section est subdivisée en trois parties relatives à la masse moléculaire, à l'enchevêtrement et au caractère élastique des polymères étudiés. Notons qu'il existe bien évidemment de fortes connexions entre ces différents critères et que les distinctions adoptées visent uniquement à traduire les diverses approches rencontrées au sein de la littérature.

I. 5. 1. La masse moléculaire et la polydispersité

De manière générale, Tordella [4] déclare que le débit critique d'apparition de l'instabilité est d'autant plus faible que la viscosité du polymère étudié est importante.

Vlachopoulos et Alam [45] ainsi que Tordella [4] observent que la contrainte de cisaillement critique diminue avec la masse moléculaire M_w . De même, Baik et Tzoganakis [19] ainsi que Spencer et Dillon [39] confirment cette tendance sur des polypropylènes et des polystyrènes. Spencer et Dillon [46] montrent par ailleurs que le produit de la contrainte de cisaillement critique par la masse moléculaire (soit $\tau_w \times M_w$) est constant dans le cas du polystyrène.

De plus, il a été montré sur des polystyrènes [45] que la contrainte de cisaillement caractéristique de l'apparition de l'instabilité volumique est indépendante de la distribution de masse moléculaire. En outre, Baik et Tzoganakis [19] notent, pour des polypropylènes, que le déclenchement de l'instabilité s'opère pour des taux de cisaillement et des contraintes à la paroi légèrement plus élevés si le polymère étudié n'est que faiblement polydispersé.

I. 5. 2. L'enchevêtrement et le caractère branché

Goutille et al. [31] se sont intéressés au comportement d'un SBR linéaire et d'un SBR branché en étoile. Ils montrent que le déclenchement du défaut volumique est fortement dépendant de la structure moléculaire du polymère. Dans les mêmes conditions d'écoulement (température et géométrie), les taux de cisaillement critiques sont de l'ordre de 60 s^{-1} pour le SBR branché contre 2.3 s^{-1} pour le SBR linéaire. Néanmoins, il est important de noter que les masses respectives des deux polymères sont assez différentes (leur polydispersité est à l'inverse très comparable). Elle s'élève à $140 \cdot 10^3 \text{ g.mol}^{-1}$ pour le SBR linéaire contre $91.3 \cdot 10^3 \text{ g.mol}^{-1}$ pour le SBR branché. Cet effet de masse peut en partie expliquer le faible taux de cisaillement critique obtenu avec le SBR linéaire.

Piau et al. [16] notent que plus le polymère est enchevêtré et plus la contrainte critique de cisaillement à la paroi est faible. Les instabilités volumiques ont donc tendance à se déclencher d'autant plus tôt en terme de contrainte (ou débit) que le polymère possède un caractère de type « fortement enchevêtré » ou « branché ».

I. 5. 3. L'élasticité

L'étude menée par Ballenger et al. [20] a consisté, comme on l'a évoqué précédemment, à comparer l'aptitude de divers matériaux d'élasticité très différente à s'écouler dans une contraction brusque. L'angle α entre l'écoulement principal et les vortex est fonction de l'élasticité du matériau. Ces observations, réalisées sur un PEBD, un PEHD et un PS, sont confirmées par la mesure rhéologique du nombre de Weissenberg qui est d'autant plus élevé que l'angle α est faible (la méthode de mesure de We sera explicitée dans les prochains paragraphes).

Ainsi, alors que les valeurs de l'angle α s'échelonnent entre 40° , 90° et 130° pour le PEBD, le PS et le PEHD, les valeurs du taux de cisaillement critique associé sont de 260, 330 et 4000 s^{-1} respectivement. Plus le caractère élastique du polymère semble prononcé et plus le déclenchement du défaut de volume a lieu pour de faibles débits d'écoulement. Une fois de plus, il faut considérer ces résultats avec beaucoup de précaution puisque les auteurs ne précisent pas si les viscosités et les masses moléculaires des produits sont proches.

La même tendance a été mise en évidence dans le cas de diverses solutions de même viscosité [27].

I. 6. Mécanismes d'initiation de l'instabilité volumique

En dépit des nombreuses études menées au cours des dernières décennies, aucun mécanisme précis n'a pu être mis en évidence pour expliquer l'initiation des défauts d'entrée. A l'heure actuelle, aucune théorie n'a, par ailleurs, été développée pour prédire la morphologie des distorsions d'extrudat, leur fréquence ou leur amplitude.

En effet, ce phénomène semble dépendre largement de la rhéologie du fluide, de la géométrie d'entrée de la filière d'extrusion ou encore des effets thermiques. Petrie et Denn [3] ont résumé à travers leur revue les éventuels mécanismes d'initiation proposés par la littérature.

I. 6. 1. L'inertie

On définit le nombre de Reynolds pour un écoulement de vitesse moyenne U dans un tube de diamètre D par la relation :

$$Re = \frac{\rho U D}{\eta} \quad \text{Eq. 1. 2}$$

avec ρ la densité du fluide et η sa viscosité.

Il s'agit du rapport entre les termes d'inertie et les termes de viscosité impliqués dans l'écoulement.

Les instabilités volumiques surviennent pour des valeurs du nombre de Reynolds très peu élevées, pouvant atteindre des valeurs aussi faibles que 10^{-15} , comme observé par Tordella en 1958 [36]. Les nombres de Reynolds généralement impliqués sont ainsi trop faibles pour que l'écoulement soit turbulent. Il est admis que l'inertie ne peut être à l'origine des déstabilisations observées en amont d'une contraction [1, 3].

I. 6. 2. Les effets thermiques

Lors de l'écoulement d'un polymère fondu, une partie de l'énergie de la matière est stockée sous forme élastique et une partie est dissipée sous forme de chaleur. Ainsi, une hausse de la température provoque une baisse de la viscosité du polymère. Le phénomène se localise surtout dans la proximité de l'interface polymère/paroi, et peut être suffisant pour causer des instabilités dans l'écoulement.

Les calculs de Lupton et Regester [47] montrent que l'auto-échauffement lors de la naissance de l'instabilité engendre une hausse de température de l'ordre de 2 à 3 °C qui correspond à une baisse très faible de la viscosité.

Les effets thermiques qui avaient fait l'objet d'études dans les années 1960 ne figurent plus, à l'heure actuelle, parmi les mécanismes capables d'expliquer l'instabilité.

I. 6. 3. Le glissement

Le glissement macroscopique est observé pour des polymères linéaires à fort enchevêtrement, alors qu'il n'existe pas pour des polymères branchés ou linéaires ne disposant pas d'un nombre suffisant d'enchevêtrements par chaîne macromoléculaire.

L'éventualité que l'instabilité volumique soit initiée par un phénomène de glissement a été mise en avant par de nombreux auteurs comme, par exemple, Benbow et Lamb [48]. La plupart de leurs travaux ont été réalisés sur des gommés silicones et sont basés sur le suivi de particules colorées, très proches des parois de l'écoulement. Ces travaux ont été largement controversés quelques années plus tard par Den Otter [41] qui montra sur une gomme silicone de viscosité plus faible, mais aussi sur d'autres polymères fondus (PEBD, PEHD), que la présence de

glissement n'était pas nécessaire pour qu'une instabilité naisse et se développe dans la région d'entrée d'une filière.

Cette observation a été confirmée par les travaux de Piau et al. [23] qui ont pu utiliser une filière en polytétrafluoroéthylène (PTFE) de façon à introduire artificiellement du glissement entre le fluide (gomme silicone) et les parois d'écoulement. Un tel artifice ne change absolument pas l'apparition du défaut volumique qui se développe de façon similaire au cas d'une filière en acier. Il permet néanmoins d'éliminer ou de réduire l'intensité des défauts de surface [1, 23]. A noter que si le glissement ne peut expliquer l'initiation de telles instabilités, il peut coexister et modifier considérablement l'apparence de l'extrudat.

Denn [1] ajoute même que les méthodes de mesure les plus précises indiquent que l'apparition de glissement a lieu pour des contraintes plus faibles que celles liées à l'apparition d'instabilités volumiques. En effet, Münstedt et al. [17] ont utilisé la vélocimétrie laser-Doppler pour mesurer des profils de vitesses d'un polyéthylène haute densité (PEHD) dans une filière plate. Au déclenchement de l'instabilité d'entrée, et pour un régime antérieur, caractérisé par la zone oscillante, ils prouvent la présence de glissement dans le canal d'écoulement.

Le défaut de volume se développe clairement alors qu'il existe du glissement. En outre, aucune vitesse de glissement n'a été décelée dans le cas d'un polyéthylène branché basse densité (PEBD), présentant l'instabilité volumique.

I. 6. 4. L'élongation de l'écoulement amont

Il est très délicat de distinguer l'influence de la rhéologie du polymère de celle imposée par la géométrie d'entrée de l'écoulement. L'instabilité de volume naît pour des conditions rhéologiques particulières, étroitement liées à la géométrie de la filière. Néanmoins, soulignons le fait que, d'une part, les fluides newtoniens ne souffrent pas d'instabilités d'entrée et que, d'autre part, la sévérité des distorsions d'extrudat dépend de la forme du convergent d'entrée [22].

En définitive, il n'existe pas de théorie précise capable de décrire le mécanisme d'initiation de l'instabilité. Les deux parties suivantes sont simplement destinées à présenter l'avancée des travaux dans la caractérisation du comportement élongationnel du polymère fondu dans une contraction. Les interprétations qui en découlent permettent en effet de mieux cerner les conditions d'écoulement nécessaires au déclenchement de l'instabilité et d'en proposer une explication.

I. 7. Le rôle des recirculations dans la déstabilisation de l'écoulement principal

Les recirculations secondaires appelées vortex ont souvent été décrites comme à l'origine des déstabilisations amont. En effet, l'apparition des défauts volumiques a ainsi pu être corrélée à l'instabilité des vortex, qui de façon plus ou moins périodique, sont capables de se décharger dans l'écoulement principal et de le déstabiliser [3, 32].

Benbow et Lamb [48] suggèrent que la perturbation de l'écoulement amont suppose le mélange, dans la région d'entrée, de fluide possédant des passés très différents. Le défaut de volume serait donc largement tributaire des différentes recouvrances élastiques impliquées.

Deux PDMS linéaires ont fait l'objet d'une étude de vélocimétrie par image de particules. L'écoulement d'entrée de ces deux fluides présente des vortex « en coin » de taille négligeable et est, malgré cela, sujet à l'initiation d'instabilités volumiques de type hélicoïdal [35]. Il apparaît en

outre que l'écoulement principal n'est que peu perturbé très en amont de l'orifice, particulièrement sur l'axe de symétrie. Ceci va à l'encontre des écoulements généralement soumis à la déstabilisation de vortex.

Les études récentes montrent que le rôle des vortex dans la perturbation de l'écoulement amont est de plus en plus nuancé. McKinley et al. [49] ont mené une étude sur des fluides de Boger forcés dans une contraction axisymétrique. Ils notent la croissance de vortex dits « de coin » et de vortex « de lèvres », juste au coin de la contraction, comme l'on observé Piau et al. sur des PDMS [26]. Pour des nombres de Deborah suffisamment importants, ils observent que ces vortex, après s'être largement développés, pulsent de façon régulière, et deviennent asymétrique, formant un mouvement de spirale autour de l'orifice. Pour des nombres de Deborah encore plus élevés ($De \approx 15$), ces oscillations deviennent apériodiques.

Des mesures par vélocimétrie laser-Doppler montrent qu'il existe un régime pour lequel l'écoulement d'entrée est perturbé et présente des oscillations tridimensionnelles périodiques dans une région très confinée autour de la contraction. Cette perturbation apparaît pour un nombre de Deborah pour lequel le déclenchement des pulsations des vortex n'a pas encore eu lieu.

De plus, les expériences menées en vélocimétrie laser-Doppler par Wassner et al. [33] montrent que l'utilisation d'un convergent conique de demi-angle 45° permet de supprimer la présence de recirculations généralement observées sur un PEBD forcé dans une contraction brusque. L'écoulement secondaire ne peut dans ce cas se développer puisque les parois du convergent occupent l'espace qui leur est habituellement alloué dans le cas d'une entrée à fond plat. Les figures ci-après en témoignent :

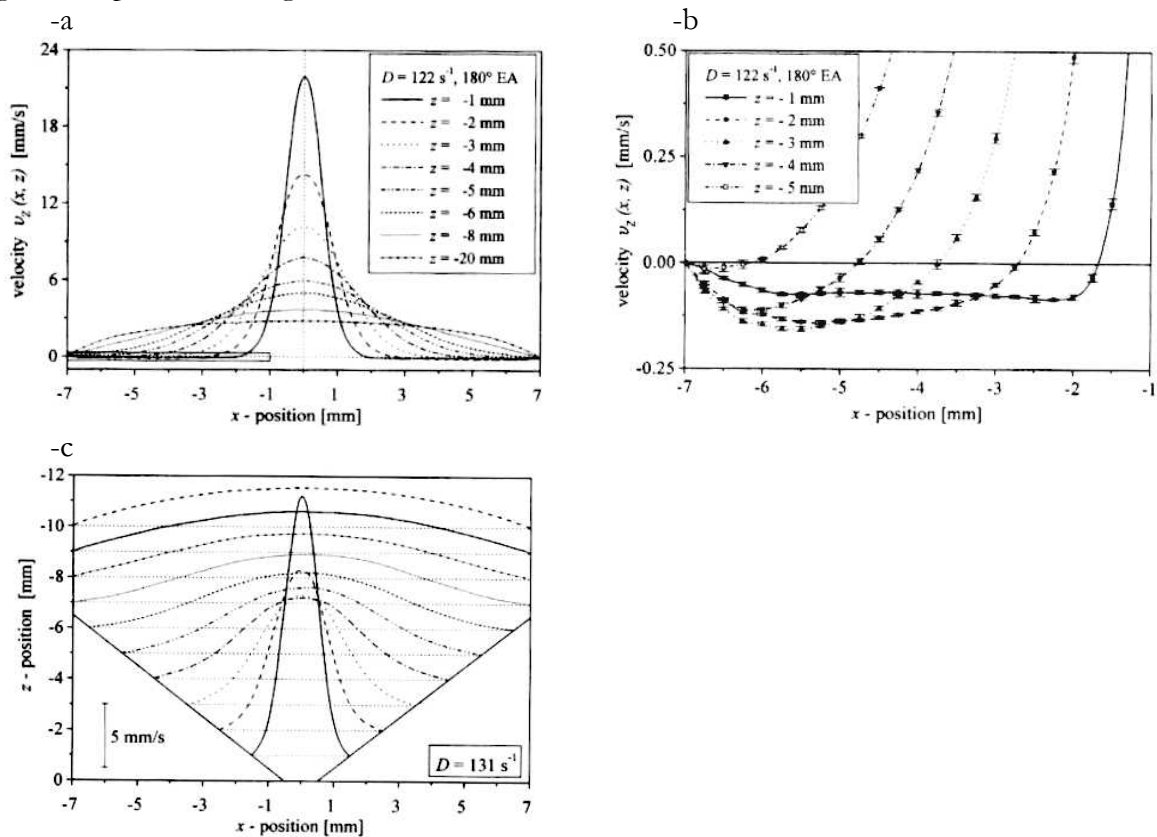


Fig. 1. 23 : Profil de vitesse mesuré dans la direction de l'écoulement (V_z) pour différentes positions transverses (x), lors de l'écoulement d'un PEBD à 150°C , avec un convergent de type fond plat (a et b) et avec un convergent d'angle 90° . La figure (b) est un zoom de la figure (a) [33].

La mesure d'une vitesse positive V_z indique que l'écoulement a lieu dans le sens de l'écoulement principal imposé par l'extrusion. Les vitesses V_z négatives (figure 1. 23. b) mesurées dans la région « en coin » de l'entrée de filière attestent de la présence de recirculations dans lesquelles le polymère piégé s'écoule dans un sens contraire à l'écoulement principal. Un tel phénomène n'est absolument pas observé dans le cas du convergent d'angle 90° où toutes les vitesses mesurées sont positives.

Comme largement observé par plusieurs auteurs [20, 22], les entrées de type conique présentent néanmoins des instabilités de type volumique. Un PEBD peut, dans cette configuration, présenter une instabilité hélicoïdale puis chaotique. L'absence de recirculations et la présence de déstabilisations de l'écoulement amont prouvent que les vortex ne sont pas forcément à l'origine des instabilités d'entrée.

I. 8. Caractérisation de l'écoulement au déclenchement de l'instabilité

I. 8. 1. Critères de déclenchement de l'instabilité volumique

❖ La contrainte de cisaillement à la paroi

Il s'agit du critère le plus couramment utilisé pour décrire l'apparition de l'instabilité volumique. Les valeurs critiques sont généralement calculées en rhéométrie capillaire à partir de la relation :

$$\tau_w = \frac{\Delta p_c D}{4L} \quad \text{Eq. 1. 3.}$$

avec Δp_c la perte de charge corrigée (affranchie des effets d'entrée) estimée à l'apparition de l'instabilité, L et D la longueur et le diamètre de la filière utilisée.

Cette grandeur est largement utilisée par facilité de calcul mais semble inadaptée à la caractérisation de l'initiation de l'instabilité. En effet, elle exprime un niveau de contrainte régnant dans le capillaire alors que l'on sait que l'instabilité se déclenche à l'entrée de la filière.

❖ La contrainte élongationnelle estimée par la méthode de Cogswell

Par l'observation d'écoulements dans un convergent, Cogswell [50] a proposé une méthode de calcul de paramètres élongationnels à partir de données issues de la rhéométrie capillaire. Il est alors intéressant de pouvoir comparer ces paramètres élongationnels relativement à plusieurs géométries d'écoulement (diamètre et longueur de filière), plusieurs températures d'extrusion, ou encore à divers matériaux de nature moléculaire différente.

L'analyse de Cogswell fait intervenir la perte de charge due aux effets d'entrée, régnant dans le convergent. Elle décompose cette pression sous la forme de deux contributions différentes, appartenant respectivement à l'élongation et au cisaillement. Les expressions suivantes permettent le calcul de la contrainte et du taux de déformation élongationnels :

$$\sigma_{el} = \frac{3}{8}(m+1)\Delta P_e \quad \text{Eq. 1. 4.}$$

$$\dot{\epsilon}_{el} = \frac{4}{3} \frac{\dot{\gamma}_{app}}{(m+1)} \frac{\tau_w}{\Delta P_e} \quad \text{Eq. 1. 5.}$$

avec m l'indice de pseudo-plasticité de la loi puissance, ΔP_e la perte de charge due aux effets d'entrée, τ_w la contrainte de cisaillement à la paroi, $\dot{\gamma}_{app}$ le taux de cisaillement apparent, σ_{el} et $\dot{\epsilon}_{el}$ la contrainte et le taux de déformation élongationnels.

Les valeurs de la pression d'entrée et de la contrainte de cisaillement sont généralement calculées à partir des corrections de Bagley.

Kim et Dealy [51] ont mis en évidence le fait que l'apparition de l'instabilité soit liée aux propriétés élongationnelles, en particulier aux contraintes élongationnelles du polymère. Ils montrent que, pour une série de polyéthylènes, la contrainte élongationnelle critique varie de 1.7 à 3.7 MPa.

Cette donnée est d'autant plus pertinente qu'elle est indépendante de la température (pour une large gamme de température) comme l'indique le graphique ci-dessous :

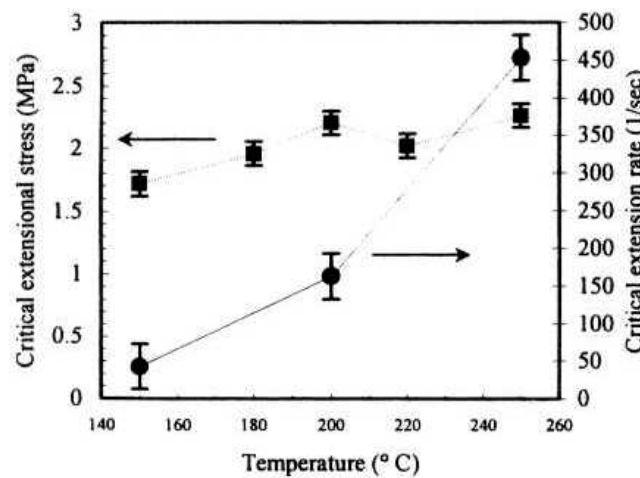


Fig. 1. 24 : Variation de la contrainte et du taux de déformation élongationnels critiques en fonction de la température pour un polyéthylène métallocène [51].

On observe que le taux de déformation élongationnel critique est, par contre, tributaire de la température.

En résumé, la pertinence de la contrainte élongationnelle est réelle puisqu'elle dépend essentiellement des propriétés moléculaires telles que la masse moléculaire moyenne en masse, la distribution de masse moléculaire ou encore le taux de longues chaînes latérales. Kim et Dealy affirment que, dans le cas de polyéthylènes, la contrainte élongationnelle critique est plus élevée avec un faible taux de longues chaînes latérales et avec une large distribution de masse moléculaire.

En revanche, on note que la contrainte élongationnelle critique est plus élevée pour un SBR de type branché que pour un SBR de type linéaire. Dans le cas du SBR linéaire, la contrainte élongationnelle critique est comprise entre 0.7 et 1.2 MPa. Le polymère branché voit sa contrainte critique évoluer entre 1.4 et 1.9 MPa. Dans ce cas, il n'existe pas non plus de valeur unique capable de décrire le déclenchement du défaut. Les structures moléculaires ainsi que les masses moléculaires des deux copolymères étudiés sont trop différentes [31].

Une bonne corrélation est observée entre la détermination de contraintes élongationnelles par la méthode de Cogswell et l'estimation de première différence de contraintes normales obtenues par biréfringence d'écoulement [31].

❖ La déformation recouvrable

Rappelons que Bagley [52] introduit la contrainte de cisaillement à la paroi obtenue en rhéométrie capillaire par l'expression :

$$\tau_w = \frac{PR}{2(L + eR)} \quad \text{Eq. 1. 1.}$$

avec R le rayon du capillaire, L sa longueur, P la pression totale mesurée en amont de la filière et e le terme correctif adimensionnel qui représente une longueur effective supplémentaire, traduisant la perte de charge due à la restriction du convergent.

Bagley présente ce dernier terme comme la somme, pour un fluide viscoélastique, d'une contribution dite visqueuse, propre au fluide newtonien, et d'une contribution élastique. e s'écrit :

$$e = n + \frac{s_R}{2} \quad \text{Eq. 1. 6.}$$

où n est le terme appelé « perte de Couette » et s_R est la déformation recouvrable (recoverable shear strain en anglais) qui représente l'énergie élastique stockée par le fluide alors qu'il est forcé dans le convergent.

Bagley a essayé de voir si les fluides viscoélastiques fondus pouvaient obéir à la loi de Hooke définie comme suit :

$$s_R = \frac{\tau_w}{G} \quad \text{Eq. 1. 7.}$$

$$\text{avec } G = \frac{RT\rho}{M_w} \quad \text{Eq. 1. 8.}$$

où G est le module élastique, R la constante des gaz parfaits, T la température, M_w la masse moléculaire et ρ la densité du fluide.

On obtient ainsi l'égalité :

$$s_R = \frac{M_w \tau_w}{RT\rho} \quad \text{Eq. 1. 9.}$$

$$\text{ou } \tau_w M_w = RT\rho s_R \quad \text{Eq. 1. 9. bis}$$

Le terme correctif e peut alors s'écrire :

$$e = n + \frac{\tau_w}{2G} \quad \text{Eq. 1. 10.}$$

Si l'on trace le terme e issu des corrections de Bagley en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi, on peut calculer aisément le module élastique G . On en déduit la déformation recouvrable s_R , en chaque point de la courbe d'écoulement. L'estimation de G permet aussi le calcul de la masse moléculaire M_w : Bagley montre que les masses moléculaires recalculées à partir de simples données issues de la rhéométrie capillaire sont en accord avec celles déterminées par des mesures de viscosité intrinsèque.

D'après plusieurs auteurs [2-4], quand un polymère fondu est forcé à travers un capillaire ou une filière plate, des distorsions apparaissent dans le volume de l'extrudat lorsque la déformation

recouvrable de l'écoulement atteint une valeur comprise entre 1 et 10. De très nombreuses observations conduisent même à une gamme de valeurs plus étroite, comprise entre 5 et 8.

Bagley [52] trouve des valeurs de 15, 6 et 7 respectivement pour des polyéthylènes basse densité, des polyéthylènes haute densité et des polystyrènes :

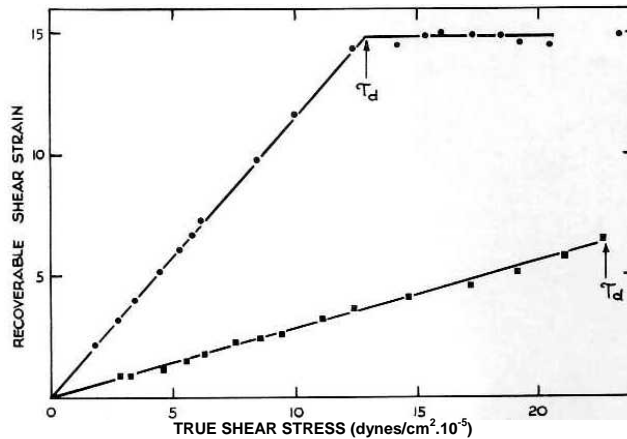


Fig. 1. 25 : Variation de la déformation recouvrable en fonction de la contrainte corrigée de cisaillement, pour un PEBD (courbe supérieure) et un PEHD (courbe inférieure) [52].

Les travaux de Bagley [52] et Spencer et Dillon [46] apportent des conclusions très semblables. Le phénomène de distorsion volumique est une manifestation de l'élasticité du polymère et la relation $\tau_w \times M_w$ trouvée constante pour des polystyrènes serait l'expression simple de la loi de Hooke définie précédemment [46]. On imagine facilement que si, au déclenchement de l'instabilité, le produit $\tau_w \times M_w$ est constant, la déformation recouvrable s_R critique l'est aussi, d'un polystyrène à un autre.

De plus, la déformation recouvrable critique demeure généralement indépendante de la température et de la masse moléculaire. Seul Bagley [52] montre une légère décroissance de la déformation recouvrable critique en fonction de la température, pour des polystyrènes : les valeurs critiques sont de 7.7, 7.4 et 7.1 pour des températures de 175, 200 et 225°, respectivement. Il s'agit d'un écart assez peu significatif, mais correspondant bien à l'équation 1.9.

Il ajoute que la déformation recouvrable est indépendante de la masse moléculaire dans la mesure où des branchements longs ne sont pas présents. En effet, Bagley nuance la pertinence de ce critère par le fait que des polymères de structures moléculaires très différentes extrudés dans des conditions très diverses pourraient mener à des différences non négligeables des valeurs critiques de déformation recouvrable.

De plus, par l'étude de nombreux mélanges réalisés sur des polystyrènes, il apparaît [45] que la déformation recouvrable critique dépend fortement de la distribution de masse moléculaire.

Il existe d'autres méthodes de détermination du module élastique G , différentes de celle introduite par Bagley [52] : extension de la théorie des caoutchoucs, mesures indirectes par estimation du gonflement en sortie de filière [45] ou de la perte de charge à l'entrée d'un convergent, calcul à partir de mesures de premières différences de contraintes normales ou mesures directes en rhéométrie oscillatoire. Par ailleurs, le module G peut s'écrire comme le rapport entre une viscosité plateau η_0 et un temps de relaxation caractéristique λ . L'expression de la déformation recouvrable devient :

$$s_R = \frac{\tau_w}{G} \approx \frac{\lambda \tau_w}{\eta_0} \approx \lambda \dot{\gamma} \quad \text{Eq. 1. 11.}$$

On identifie finalement le terme en $\lambda \dot{\gamma}$ comme l'expression du nombre de Weissenberg We , obtenu pour un fluide de Maxwell.

❖ Le nombre de Weissenberg

Ce nombre adimensionnel est défini comme suit, dans un écoulement en cisaillement simple :

$$W_e = \frac{N_1}{2\tau_w} \quad \text{Eq. 1. 12.}$$

où N_1 est la première différence de contraintes normales et τ_w la contrainte de cisaillement. Il traduit l'importance de la mémoire élastique du polymère : il s'agit du rapport entre les forces visqueuses et élastiques du fluide. Malheureusement, en raison de la difficulté de mesurer N_1 , la rhéométrie ne nous permet pas d'accéder aux valeurs du nombre de Weissenberg pour des taux de cisaillement bien supérieurs à 1 s^{-1} . Les taux de cisaillement critiques caractéristiques de l'apparition du défaut varient généralement entre 10 et 1000 s^{-1} . La rhéométrie reste néanmoins utile, notamment pour comparer le caractère élastique de différents matériaux.

Selon Ballenger et White [25], le nombre de Weissenberg est un critère pertinent capable de caractériser l'apparition du défaut volumique. Néanmoins, ils calculent rarement un nombre de Weissenberg mais préfèrent par commodité estimer le rapport entre les pertes de charges dues au convergent et la contrainte de cisaillement à la paroi calculée dans le capillaire. Ce rapport est d'après eux l'équivalent du nombre de Weissenberg. Goutille et al. [31] montrent que, pour une géométrie d'écoulement donnée, le nombre de Weissenberg critique ne varie pas d'un SBR linéaire à un SBR branché ($We = 0.11$), alors que les taux de cisaillement critiques sont fondamentalement différents.

Malgré tout, White [24] montre que ce nombre adimensionnel critique varie d'un polymère à l'autre, tout comme la déformation recouvrable. De plus, le calcul d'un tel nombre est souvent hasardeux à cause du choix des valeurs de λ et de $\dot{\gamma}$ et peut entraîner des divergences d'une étude à l'autre.

I. 8. 2. Caractérisation macroscopique de l'écoulement d'entrée

L'étude menée par Legrand et al. [32] sur les localisations de contraintes à la contraction lui ont permis de supposer que le mécanisme d'initiation pouvait prendre place de cette façon :

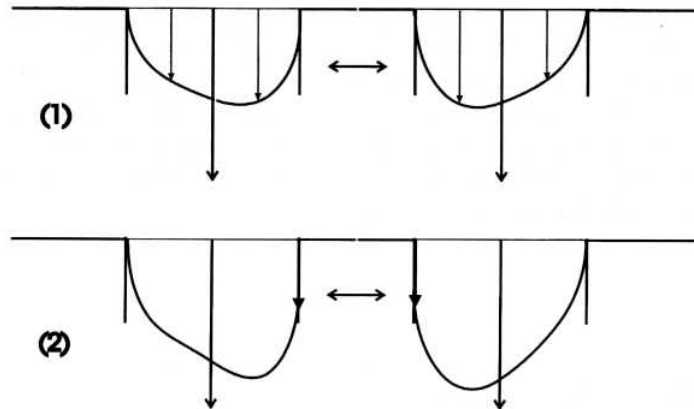


Fig. 1. 26 : Forme du profil de vitesse dissymétrique au plan de la contraction, à la déstabilisation de l'écoulement (1) et au développement de l'instabilité (2) [32].

Le profil de vitesse à la contraction deviendrait asymétrique, au plan délimitant la région d'entrée et le canal d'écoulement, avec des accélérations latérales initiées alternativement d'un côté de la contraction à l'autre. Cette hypothèse est tout à fait en accord avec le fait que c'est au niveau du plan de la contraction que la contrainte ou déformation élongationnelle est maximale [4, 52].

Everage et Ballman [53] introduisent, dans un modèle de Maxwell, un taux de déformation élongationnel critique. En effet, selon eux, l'instabilité est étroitement liée à un phénomène d'incapacité de la matière à se déformer sous des sollicitations élongationnelles critiques. Ils ont utilisé des travaux effectués sur des polypropylènes et sur différents angles de convergents en relevant les conditions critiques d'initiation de l'instabilité pour chaque cas. Les taux de cisaillement critiques sont de 20000, 10500, 5800 et 660 s⁻¹ pour les convergents de demi-angle 3, 6, 10 et 45°. Ils ont ainsi calculé les taux d'élongation maximaux dans la région d'entrée associés à ces valeurs critiques. Les valeurs obtenues ne varient que très peu entre elles (1040, 1113, 1050 et 1195 s⁻¹ pour les quatre convergents respectifs). Les auteurs supposent que la déstabilisation de l'écoulement amont s'opère, pour un matériau donné, à une vitesse de déformation critique.

Ballenger et al. [20] ont prouvé que l'élasticité du matériau et sa capacité à s'orienter étaient des facteurs déterminants quant à la déstabilisation de l'écoulement d'entrée. Lors d'un cisaillement suffisamment élevé, les molécules se voient provisoirement étirées dans le sens de l'écoulement, de telle sorte qu'elles s'éloignent de leur configuration d'équilibre (pelote statistique). Ce mécanisme est à l'origine de la déformation macroscopique élastique du polymère. Il n'est pas exclu que l'écoulement instable apparaisse alors qu'une déformation élastique ou une contrainte élongationnelle critique est atteinte, comme ont pu le supposer Bagley [52] ou Kim et Dealy [51]. White [24] décrit le défaut volumique comme une instabilité hydrodynamique initiée sous la forme d'un écoulement en forme de spirale atteinte pour un nombre de Weissenberg suffisamment élevé.

I. 8. 3. Caractérisation de l'écoulement d'entrée à l'échelle macromoléculaire

Les effets de la température et de la déformation imposée à l'entrée du convergent sur le déclenchement du défaut suggèrent que l'instabilité de volume est l'expression de la viscoélasticité du polymère. A l'échelle de la macromolécule, deux phénomènes semblent pouvoir expliquer la déstabilisation d'un écoulement en amont d'une contraction.

❖ Le désenchevêtrement

La déformation recouvrable introduite précédemment apparaît comme une grandeur macroscopique capable de traduire le phénomène de désenchevêtrement et d'orientation moléculaire.

Larson [2] décrit l'apparition du phénomène d'instabilité volumique comme fortement liée à l'orientation moléculaire du polymère fondu. Il compare ces observations à celles effectuées sur des solutions de polymères enchevêtrés qui, comme le font les polymères à l'état fondu, présentent une instabilité lorsque la déformation recouvrable atteint une valeur de 2 à 5 [54].

Cette valeur est atteinte alors que les solutions, à l'apparition de l'instabilité, ont une valeur critique de la contrainte de cisaillement et un module G deux fois moins importants que dans le cas de polymères fondus. On peut aisément en conclure qu'un degré d'orientation moléculaire critique (quantifiable par la détermination de la déformation recouvrable s_R) serait alors suffisant pour déclencher la naissance d'un défaut volumique.

❖ La rupture

Même si une contrainte limite est nécessaire pour initier l'instabilité, on peut supposer que le mécanisme originel implique la réponse temporelle du fluide viscoélastique. Everage et Ballman [53] suggèrent en effet qu'un taux de déformation critique traduit un mécanisme de rupture initié au sein de l'écoulement purement élongationnel, sur l'axe de symétrie.

Larson [2] affirme que, au cours du régime caractéristique de l'instabilité volumique, l'écoulement à travers une filière est tributaire du temps. On sait notamment que, pour une sollicitation suffisamment élevée, un polymère fondu peut être incapable de se déformer élastiquement au-delà d'une certaine limite. Il présente alors un phénomène de rupture. La localisation de la rupture serait, d'après Tordella [4], au point de déformation élongationnelle maximale.

Kim et Dealy [51] trouvent une valeur critique de la contrainte élongationnelle indépendante de la température mais pas de la masse moléculaire ni de la polydispersité. La rupture pourrait naître sous une contrainte critique dont la valeur dépend uniquement de la structure moléculaire du polymère.

Néanmoins, les mécanismes moléculaires associés sont à l'heure actuelle toujours mal compris et ne permettent pas de conclure à la présence de rupture dans un écoulement très élongationnel.

Il reste difficile de quantifier l'influence des propriétés élongationnelles dans les écoulements d'entrée. La simulation numérique par éléments finis pourrait apparaître comme la solution à la caractérisation poussée d'écoulements dans une contraction. Cependant, le choix d'équations constitutives s'avère déterminant quant à la simulation d'un écoulement tridimensionnel complexe, où propriétés en cisaillement et en élongation ainsi qu'en régime transitoire et établi semblent jouer un rôle important dans le développement d'instabilités volumiques.

CHAPITRE II
MATERIELS ET DISPOSITIF EXPERIMENTAL

CHAPITRE II

MATERIELS ET DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Résumé

Ce chapitre a pour but de présenter d'une part les matériaux utilisés au cours de cette étude et d'autre part les divers protocoles expérimentaux.

La première partie du chapitre est essentielle puisqu'elle met en évidence les différences notables qui existent entre les paramètres moléculaires et rhéologiques de chaque produit. Ceci contribuera à expliquer l'influence des caractéristiques intrinsèques des matériaux sur la naissance des instabilités volumiques.

Par ailleurs, la présentation du montage d'extrusion équipé d'un système de vélocimétrie laser-Doppler et de biréfringence d'écoulement permet de mettre en relief la pertinence des mesures qui feront l'objet des chapitres III et IV, mais aussi de connaître les limites physiques et techniques associées à toute expérience. De même que l'on a fait varier la rhéologie des polymères impliqués, on s'est aussi attaché à utiliser des filières de formes très différentes, dans des conditions de débits et de température diverses, que l'on a essayé de contrôler au mieux, avec la connaissance des limites que nous impose l'expérience.

Table des Matières

II. 1. Caractéristiques moléculaires et rhéologiques des polymères étudiés.....	38
II. 1. 1. Caractéristiques moléculaires	38
II. 1. 2. Caractérisation rhéologique.....	39
II. 2. Le rhéomètre capillaire.....	45
II. 2. 1. Principe de fonctionnement.....	45
II. 2. 2. Les filières d'extrusion utilisées	46
II. 2. 3. Principe et dépouillement des mesures	47
II. 3. Extrusion en filière plate transparente.....	48
II. 3. 1. Description du montage expérimental d'extrusion.....	49
II. 3. 2. Principe et méthodes de mesures associés à la biréfringence d'écoulement.....	52
II. 3. 3. Principe et méthodes de mesures associés à la vélocimétrie laser-Doppler.....	56

II. 1. Caractéristiques moléculaires et rhéologiques des polymères étudiés

A travers cette étude, nous avons tenté de décrire le comportement de polymères présentant les défauts de volume que sont l'instabilité hélicoïdale et l'instabilité chaotique.

Deux polystyrènes (PS) ainsi qu'un polypropylène (PP) ont fait l'objet de ces travaux et ont été, dans un premier temps, caractérisés rhéologiquement. Notons que ces trois polymères ne présentent en aucun cas de défaut de surface de type « peau de requin » et qu'ils s'inscrivent tout à fait dans la classification des polymères de type « branché », telle que nous venons de la présenter, bien qu'ils soient linéaires. De plus, ils ont été choisis de telle sorte qu'ils présentent les défauts évoqués plus haut pour des débits d'écoulement raisonnables.

Des travaux de thèse ont été menés au sein du projet européen *3PI* par Lavernhe-Gerbier [55] qui s'est intéressée au comportement de tous les matériaux impliqués dans le projet. En l'occurrence, le comportement du polystyrène 1 et du polypropylène ont été caractérisés. De plus, ces deux matériaux ont aussi été caractérisés par différents partenaires industriels et académiques du projet.

Le polystyrène 2 a fait l'objet d'une caractérisation moléculaire et rhéologique au sein du laboratoire *LPMI* de l'université de Pau et des pays de l'Adour. Pour ce dernier matériau, seules des mesures de force normale ont été réalisées au *CEMEF*.

Le polypropylène étudié ainsi que l'un des deux polystyrènes (PS 1) sont deux matériaux commerciaux fournis par le fabricant *DOW*, l'un des partenaires industriels du projet européen *3PI*. Leur dénomination commerciale est respectivement *PP DH109* et *PS 648*. Ce sont essentiellement sur ces deux matériaux (et en particulier sur le PS 1) que les travaux ont été menés. Le troisième matériau (PS 2) est un polystyrène commercialisé sous le nom de *PS 1960N* et synthétisé par *ATOFINA*.

Cette première partie présente donc les principales caractéristiques de ces matériaux que la rhéologie nous permet d'interpréter en terme de modules complexes, première différence de contraintes normales ou encore de viscosité.

II. 1. 1. Caractéristiques moléculaires

❖ Structure moléculaire

Rappelons brièvement la structure moléculaire des matériaux étudiés.

Le polystyrène est un polymère linéaire dont l'unité monomère est schématisée ci-dessous :

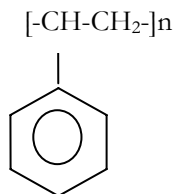


Fig. 2. 1 : Unité monomère du polystyrène.

La masse de l'unité monomère est de 104.2 g/mol. Les groupes phényle sont disposés de part et d'autre de la chaîne principale, de manière aléatoire : le polymère est amorphe.

Le polypropylène présente aussi une configuration de type linéaire possédant des groupes $-CH_3$, moins volumineux que le groupe phényle, comme indiqué ci-après :

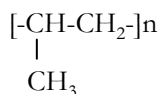


Fig. 2. 2 : Unité monomère du polypropylène.

La masse de l'unité monomère est de 42.1 g/mol. Le polypropylène étudié est majoritairement syndiotactique, donc fortement cristallin [55].

❖ Distribution des masses moléculaires, densité et température de fusion

Les différentes masses moléculaires et densités de ces polymères figurent dans le tableau ci-dessous ; elles nous ont été fournies par les fabricants respectifs.

Polymère	PP	PS 1	PS 2
Densité à 23°C	0.903	1.047	1.07
Densité à 200°C	0.749	0.973	0.971
M_n (g/mol)	99600	136100	59800
M_w (g/mol)	495200	295600	113000
M_z (g/mol)	980900	461500	175200
M_w/M_n	4.97	2.17	1.72

Tab. 2. 1 : Masses moléculaires et densité des polymères étudiés.

On remarque que les produits issus du fabricant *DOW* (PS 1 et PP) sont de fortes masses par rapport au PS 2, ce qui laisse supposer qu'ils possèdent de fortes viscosités. Par ailleurs, les matériaux présentés ne sont que faiblement polydisperses.

De plus, il a été vérifié, par mesure GPC MALLS, que les matériaux fournis par *DOW* ne présentent pas de branchements.

Le polypropylène présente une température de fusion de 168 °C et une température de transition vitreuse de 0 °C contre 100 °C pour le PS 1 et 105 °C pour le PS 2.

II. 1. 2. Caractérisation rhéologique

❖ Comportement en cisaillement : mode dynamique et continu

Mesure du module complexe :

Les mesures rhéologiques en cisaillement ont été réalisées à l'aide d'un rhéomètre à déformation imposée. Il a été utilisé en configuration plan-plan en mode dynamique et permet d'atteindre des fréquences de l'ordre de $5 \cdot 10^{-3} \text{ rad.s}^{-1}$. Le polymère cisailé entre les deux plans est soumis à de très faibles déformations de façon à rester dans le domaine de la viscoélasticité linéaire. On mesure alors les composantes visqueuses et élastiques du module complexe.

Les résultats présentés aux figures 2. 3 et 2. 4 sont associés à une température de 200 °C. En effet, on a réalisé des essais à différentes températures et on a effectué une superposition en temps/température de façon à obtenir le comportement du matériau sur une large gamme de fréquences (sept décades en l'occurrence).

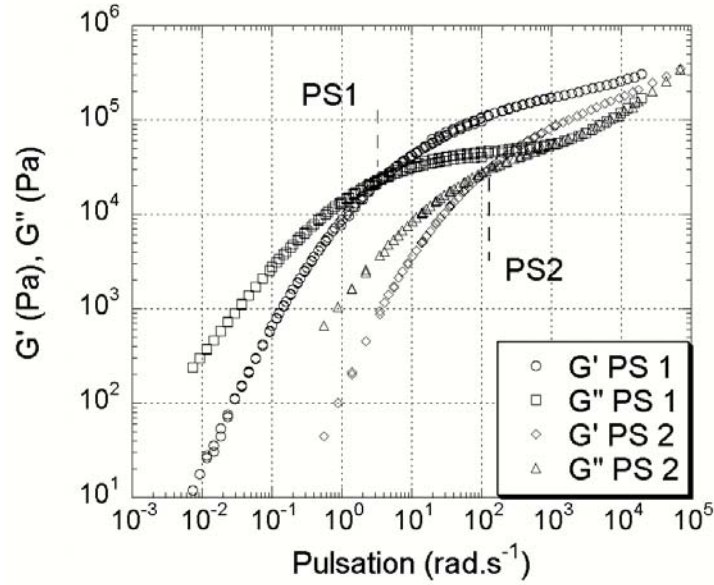


Fig. 2. 3 : Comparaison des modules complexes des deux polystyrènes, à 200 °C.

La fréquence ω_c relative au croisement des courbes G' et G'' est la fréquence de sollicitation à partir de laquelle le module élastique G' devient supérieur au module visqueux G'' , fréquence à partir de laquelle le matériau se comporte préférentiellement à l'image d'un solide plutôt que d'un fluide. Il s'agit de l'inverse d'un temps de relaxation moyen.

On note que la valeur de ω_c est très différente pour les PS 1 et PS 2 : on relève une fréquence de 3.5 pour le premier contre 140 rad.s^{-1} pour le second. Ceci traduit un comportement plus élastique pour le PS 1 par rapport au PS 2.

A l'inverse, le comportement du PP et du PS 1 sont assez proches puisque l'on note une valeur ω_c de 2.2 rad.s^{-1} pour le PP :

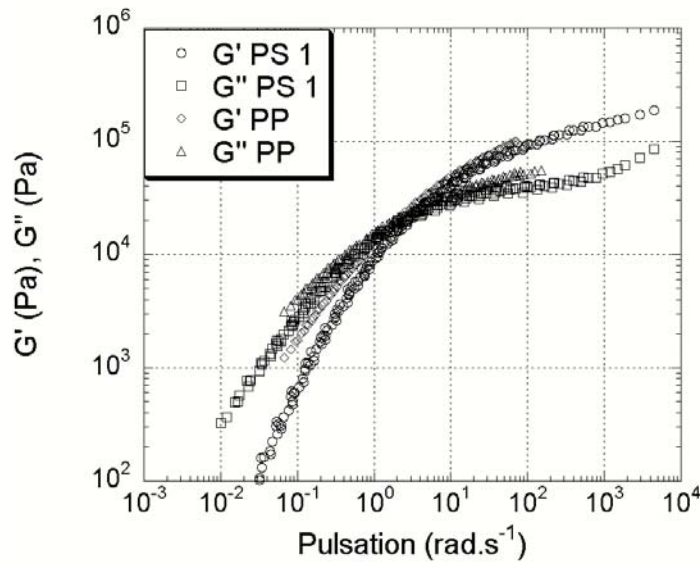


Fig. 2. 4 : Comparaison des modules complexes du PS 1 et du PP, à 200 °C.

De plus, les modules de plateau caoutchoutique G_N^0 diffèrent peu : ils s'élèvent à $4.5 \cdot 10^5$ Pa pour le PS 1 et à $1.8 \cdot 10^5$ Pa pour le PP [55].

On résume, dans le tableau ci-après, les temps de relaxation moyens associés d'une part à la fréquence ω_c et d'autre part au diagramme Cole-Cole.

Polymère	PP	PS 1	PS 2
$1/\omega_c$ (s)	0.45	0.29	0.01
Cole-Cole (s)	42.2	1.7	0.06

Tab. 2. 2 : Temps de relaxation moyens des polymères étudiés, à 200°C.

Ce tableau montre que les trois matériaux se classent de la façon suivante, du plus au moins élastique : PP, PS 1 et PS 2. Ces mesures sont confirmées par la mesure du nombre de Weissenberg présentée au paragraphe suivant.

Les énergies d'activation associées à chaque matériau, déduits des facteurs de glissement a_T , prennent les valeurs de 178, 145.5 et 38.2 kJ.mol⁻¹ pour le PS 2, le PS 1 et le PP, respectivement. Ces valeurs témoignent de la forte sensibilité des polystyrènes à la température.

Mesure de la force normale :

En mode continu, on cisaille le matériau entre un disque et un cône d'angle très faible, pour lequel la contrainte et le taux de cisaillement sont constants en tout point de l'échantillon. On mesure, en fonction du taux de cisaillement imposé, une contrainte de cisaillement τ ainsi qu'une première différence de contraintes normales N_1 . On peut en déduire le nombre de Weissenberg défini comme suit :

$$W_e = \frac{N_1}{2\tau} \quad \text{Eq. 2. 1.}$$

Ce nombre sans dimension permet de caractériser, en cisaillement simple, le rapport entre les forces d'élasticité et les forces de viscosité. L'estimation d'un tel nombre ne peut avoir lieu que pour une certaine gamme de taux de cisaillement. Le graphique suivant présente une comparaison quantitative des mesures du nombre de Weissenberg pour les trois polymères :

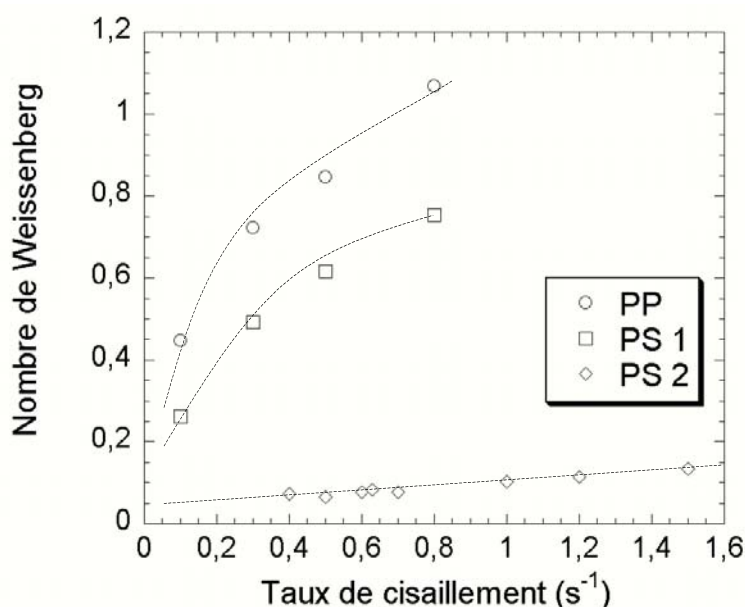


Fig. 2. 5 : Variation du nombre de Weissenberg en fonction du taux de cisaillement, pour les trois polymères, à 200°C.

Comme nous l'avions supposé précédemment, on observe nettement que le PS 1 possède un caractère plus élastique que le PS 2. Le PP apparaît comme le fluide le plus élastique des trois, sachant que son comportement reste assez proche de celui du PS 1.

Mesures de la viscosité :

Toujours avec un rhéomètre à déformation imposée, utilisé en configuration plan/plan, on mesure la viscosité complexe obtenue en mode dynamique fonction de la pulsation, $\eta(\omega)$. Les résultats présentés aux figures 2.6 et 2.7 sont associées à une température de 200°C. Une superposition en temps/température a permis d'obtenir le comportement du matériau sur une large gamme de fréquences.

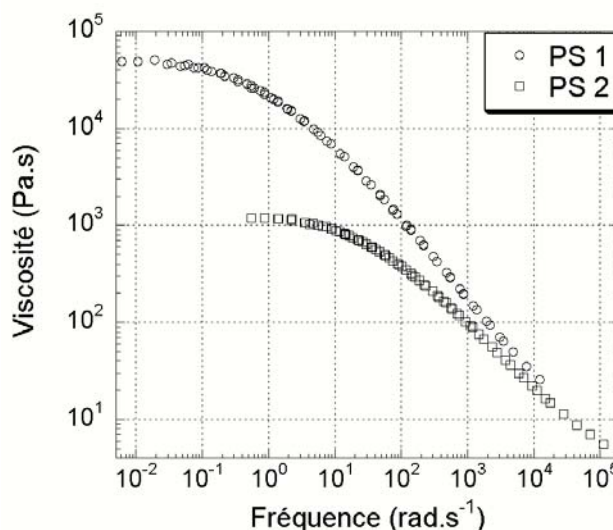


Fig. 2. 6 : Comparaison des viscosités en mode dynamique des deux polystyrènes, à 200 °C.

La viscosité plateau η_0 est estimée à 1300 Pa.s pour le PS 2 contre 52200 Pa.s pour le PS 1. Cet écart significatif entre les viscosités est théoriquement quantifiable au vu des masses moléculaires mesurées :

$$\eta_0 = BM_w^{3.4} \quad \text{Eq. 2. 2.}$$

Dans notre cas, la valeur de l'exposant est de 3.84.

La figure suivante compare les viscosités mesurées avec le PS 1 et le PP.

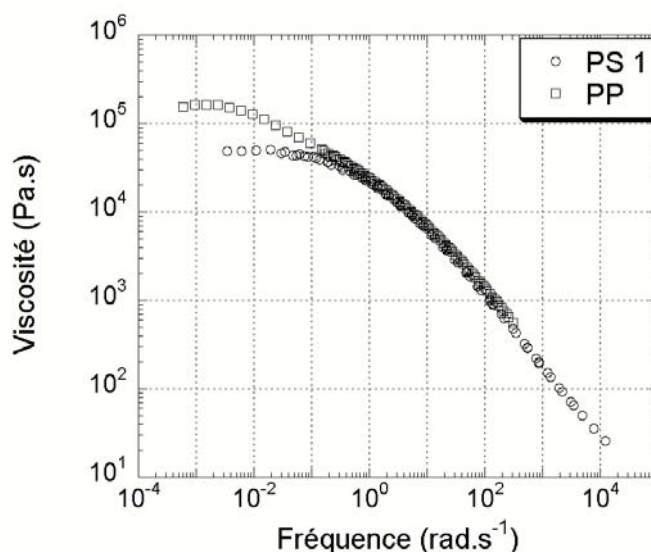


Fig. 2. 7 : Comparaison des viscosités en mode dynamique du PS 1 et du PP, à 200 °C.

Le comportement pseudo-plastique du PP et celui du PS 1 sont assez similaires. On mesure un indice de pseudo plasticité m de 0.2 et 0.11 pour le PS et le PP, respectivement. En outre, notamment pour des fréquences comprises entre 10 et 200 rad.s^{-1} , les viscosités mesurées sont très proches.

Dans la partie rhéofluidifiante de la courbe de viscosité, le comportement de chacun des produits a été modélisé par une loi « puissance » :

$$\eta = K|\dot{\gamma}|^{m-1} \quad \text{Eq. 2. 3.}$$

où m est l'indice de pseudoplasticité et K la consistance du matériau.

On a aussi utilisé une loi de type « Carreau Yasuda » :

$$\eta = \eta_0 [1 + (\lambda \dot{\gamma})^a]^{\frac{m-1}{a}} \quad \text{Eq. 2. 4.}$$

où η_0 est la viscosité du palier newtonien à faible taux de cisaillement, λ un temps caractéristique, et a un paramètre permettant d'ajuster la transition entre le plateau newtonien et la partie en « loi-puissance ».

Les valeurs des paramètres figurent dans le tableau 2. 3, dans lequel nous présentons aussi la valeur de la viscosité mesurée pour un même taux de cisaillement de 100 s^{-1} .

Polymère	PP	PS 1	PS 2
$K (\text{Pa.s}^m)$	38800	43100	7700
m	0.11	0.20	0.37
$\eta_0 (\text{Pa.s})$	125900	52200	1260
$\lambda (\text{s})$	0.97	1.13	0.05
a	0.35	0.68	0.86
$\eta (\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}) (\text{Pa.s})$	1380	1310	380
$Ea (\text{kJ.mol}^{-1})$	38.2	145.5	178

Tab. 2. 3 : Paramètres de la viscosité modélisée par une loi « puissance » et une loi de type « Carreau Yasuda » pour les trois polymères étudiés, à 200 °C.

❖ Comportement en élongation

Les essais ont été réalisés à l'aide d'un rhéomètre élongationnel de type Meissner (RME). Il s'agit d'une synthèse des caractérisations menées dans le cadre du projet européen *3PI*, par les différents partenaires industriels et académiques du projet. On mesure, au cours du temps et pour une vitesse de déformation donnée, la variation de la force d'étirage qui est directement reliée à la viscosité élongationnelle du matériau. Les résultats obtenus pour plusieurs vitesses de déformation, pour le PP et le PS 1 exclusivement (les mesures n'ont pas pu être menées dans le cas du PS 2 qui possède une viscosité trop faible) sont présentés sur les figures 2. 8 et 2. 9.

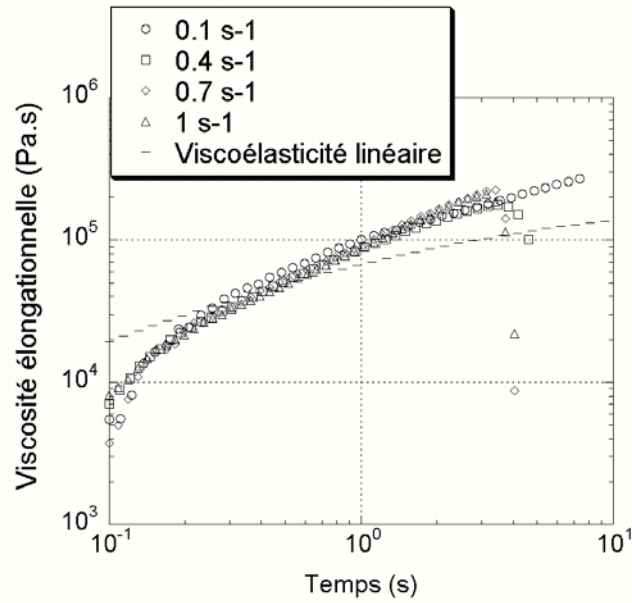


Fig. 2. 8 : Variation de la viscosité élongationnelle et troutonienne pour le PS 1, à 190 °C, pour différents taux de déformation.

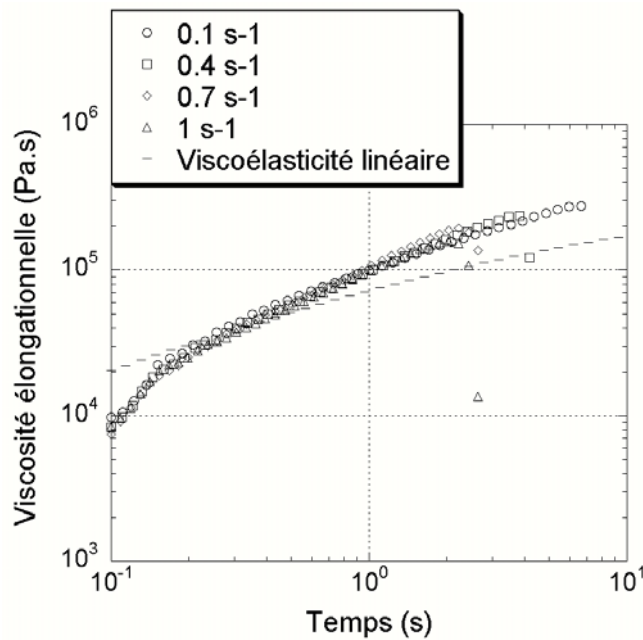


Fig. 2. 9 : Variation de la viscosité élongationnelle et troutonienne pour le PP, à 190 °C, pour différents taux de déformation.

La relation de Trouton, dans le domaine de la viscoélasticité linéaire en élongation, définit le rapport entre la viscosité élongationnelle apparente et la viscosité en cisaillement comme égal à trois. On n'observe pas de phénomène de rhéo-durcissement pour des temps suffisamment longs, même si l'on s'éloigne légèrement de la viscoélasticité linéaire. Les comportements élongationnels du PP et du PS 1 confortent le fait que les deux polymères sont de type linéaire, sans présence de branchements longs.

La comparaison des viscosités élongationnelles pour les deux polymères est présentée à la figure 2. 10.

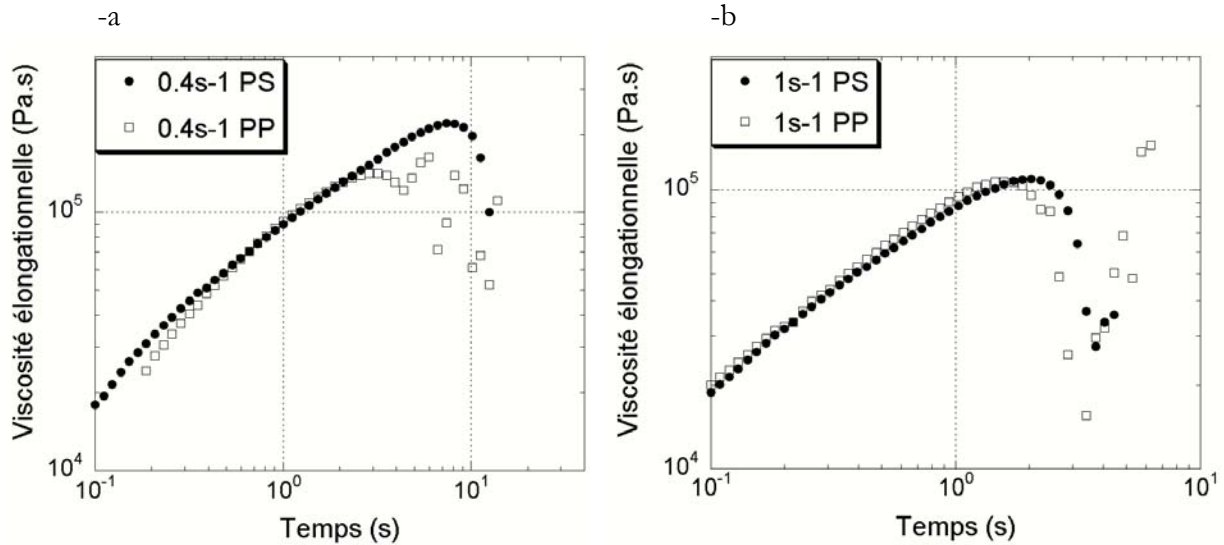


Fig. 2. 10 : Variation de la viscosité élongationnelle pour le PP et le PS 1, à 190 °C, pour une vitesse de déformation de 0.4 s⁻¹ (a) et 1 s⁻¹ (b).

On remarque que les propriétés élongationnelles des deux polymères sont très proches, et ceci quelle que soit la vitesse de déformation imposée.

II. 2. Le rhéomètre capillaire

Cette partie consiste en une présentation très succincte du dispositif expérimental associé à la rhéométrie capillaire. En effet, de précédents travaux [7, 56] ont décrit de façon très précise le fonctionnement du rhéomètre capillaire utilisé au *CEMEF*, ainsi que les méthodes de dépouillement et les limites associées.

Ce dispositif expérimental permet l'observation, en sortie de filière, des défauts volumiques à leur initiation et durant leur phase de développement, accompagnée d'un prélèvement aisé de l'extrudat.

En l'occurrence, le déclenchement du défaut hélicoïdal n'est sujet à aucune ambiguïté puisque l'écoulement axisymétrique présente en sortie de filière des distorsions hélicoïdales régulières (ces mêmes distorsions s'expriment en filière plate par des rides volumiques plus sujettes à ambiguïté).

II. 2. 1. Principe de fonctionnement

Le Rhéoplast[®] (Courbon, France) est un rhéomètre capillaire à débit imposé, et à pré-cisaillement contrôlé : la plastification de la matière est assurée, comme dans une extrudeuse, principalement par dissipation visqueuse et non par conduction simple [56]. Le schéma du principe de fonctionnement de ce rhéomètre capillaire est présenté sur la figure 2. 11.

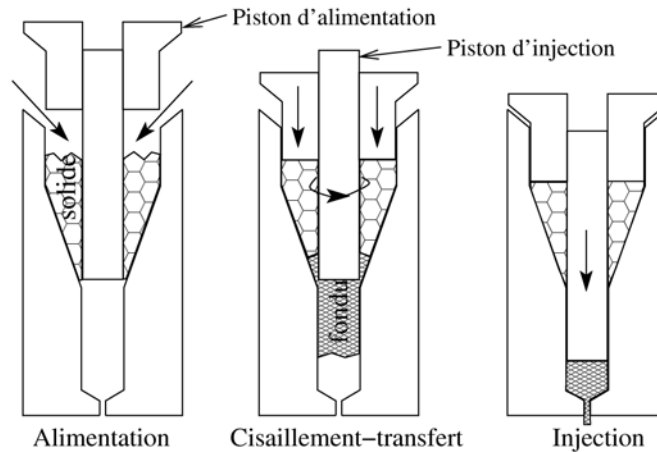


Fig. 2. 11 : Schéma de fonctionnement du rhéomètre capillaire [56].

Dans la partie supérieure de la chambre d'alimentation se trouve le réservoir de polymère solide sous forme de granulés. Dans la partie inférieure de la chambre d'alimentation est monté le capillaire d'essai.

Le piston d'alimentation est utilisé en translation verticale pour permettre de convoyer les granules et de « pressuriser » la chambre conique. Durant la phase de cisaillement-transfert, le piston d'injection est animé d'un mouvement rotatif à vitesse constante, tel que le polymère est cisailé entre les parois du fourreau conique et le piston lui-même. La phase d'injection consiste à forcer le polymère fondu dans le capillaire, à débit constant. La vitesse de translation du piston d'injection peut prendre les valeurs de 5.10^{-3} jusqu'à 10 mm.s^{-1} [7].

L'ensemble est thermostaté par des colliers chauffants. On imagine aisément que la température de l'écoulement dépende fortement de la conduction thermique du fourreau mais aussi de l'auto-échauffement du fluide cisailé. Les mesures de température ont pu être réalisées au cœur du polymère fondu par l'intermédiaire d'un thermocouple plongé dans la matière, en sortie de filière.

On mesure une pression en amont du convergent de la filière. A noter que plusieurs capteurs de pression de différentes capacités sont disponibles. Il est donc nécessaire d'adapter le choix du capteur à la gamme approximative de pressions que l'on veut mesurer, de façon à limiter les erreurs de mesure.

De plus, connaissant la géométrie de l'appareil, il est possible de mesurer la masse volumique de polymères fondus à une température donnée. Nous l'avons mesurée en pesant plusieurs fois la masse d'un volume de polymère fondu correspondant à une certaine course du piston d'injection. Les valeurs obtenues pour chacun des trois polymères étudiés ont été présentées précédemment.

II. 2. 2. Les filières d'extrusion utilisées

Les filières en carbure de tungstène ont majoritairement une entrée conique de demi-angle de 45° et les diamètres D disponibles sont de 0.93, 1.39, 2.0 et 3.0 mm. Sachant que le fourreau possède un diamètre intérieur de 16.0 mm, les rapports de contraction respectifs sont environ de 17/1, 12/1, 8/1 et 5/1.

Les rapports de longueurs associés sont de 0 (filière orifice), 4, 8, 16 et 32. Le montage de filières de grande longueur (L/D supérieur à 16, en général) nécessite le montage d'un deuxième fourreau, de façon à ce que la filière soit chauffée uniformément sur toute la longueur.

On dispose aussi de trois filières de demi-angle 90° , telle que le convergent soit de type « fond plat ». Ces filières possèdent un diamètre D de 0.93 mm et des rapports de longueur respectifs de 4, 8 ou 16. Dans la suite de l'étude, nous désignerons par la lettre α le demi-angle de convergent de la filière.

II. 2. 3. Principe et dépouillement des mesures

On suppose que le fluide extrudé est incompressible, qu'il est animé d'un écoulement stable et établi le long du capillaire. Cette dernière hypothèse ne sera pas toujours vérifiée dans notre cas durant le développement de défauts volumiques : les instabilités initiées à l'entrée du convergent affectent généralement l'écoulement en aval de la contraction, dans le capillaire et à sa sortie. Par ailleurs, on suppose que le polymère fondu ne glisse pas.

Le déplacement du piston à vitesse constante permet au polymère fondu de s'écouler dans le capillaire avec un débit Q .

La mesure de la perte de charge Δp donne alors accès à la viscosité à la paroi définie par :

$$\eta = \frac{\tau_w}{\dot{\gamma}_w} \quad \text{Eq. 2. 5.}$$

où τ_w et $\dot{\gamma}_w$ sont respectivement la contrainte et le taux de cisaillement à la paroi. Il est donc nécessaire de définir ces grandeurs à partir des valeurs mesurées, Δp et Q .

La contrainte à la paroi est donnée par l'expression :

$$\tau_w = \frac{R\Delta p_c}{2L} \quad \text{Eq. 2. 6}$$

avec R et L le rayon et la longueur de la filière et Δp_c la perte de charge corrigée des effets d'entrée.

En effet, étant donné que la pression est mesurée dans le réservoir, en amont du capillaire, il est nécessaire de corriger les valeurs mesurées, pour s'affranchir des pertes de charge additionnelles créées par la restriction de section à l'entrée du capillaire. Ces corrections dites « de Bagley » [57] consistent à utiliser des capillaires de même diamètre et de longueurs différentes (filière orifice incluse).

Si l'on trace les pressions mesurées en fonction des rapports L/D des capillaires utilisés, on obtient une droite dont l'ordonnée à l'origine donne la correction de pression d'entrée Δp_0 .

On peut aussi utiliser la perte de charge Δp_0 mesurée en amont d'une filière orifice. Cette méthode semble moins fiable car elle repose seulement sur une série de mesures alors que les corrections de Bagley s'appuient sur au moins trois séries de mesure (relatives à trois rapports de longueurs L/D). Par la suite, nous utiliserons exclusivement les corrections de Bagley.

On obtient :

$$\Delta p_c = \Delta p - \Delta p_0 \quad \text{Eq. 2. 7.}$$

Le taux de cisaillement apparent dans un capillaire est communément appelé « débit réduit » et permet de quantifier le débit d'écoulement imposé dans une géométrie donnée. Il est calculé par la relation :

$$\dot{\gamma}_{app} = \frac{4Q}{\pi R^3} \quad \text{Eq. 2. 8.}$$

Par la correction de Rabinowitsch, on peut calculer le taux de cisaillement réel à la paroi du capillaire :

$$\dot{\gamma}_w = \frac{3m+1}{4m} \frac{4Q}{\pi R^3} \quad \text{Eq. 2. 9.}$$

où m est défini par :

$$m = \frac{d \log \tau_w}{d \log \dot{\gamma}_{app}} \quad \text{Eq. 2. 10.}$$

Le paramètre m est directement l'indice de la loi puissance pour un fluide purement rhéofluidifiant.

II. 3. Extrusion en filière plate transparente

Cette partie décrit le protocole expérimental relatif à l'extrusion en filière plate transparente alimentée par une extrudeuse. Alors que les trois produits présentés au chapitre II. 1. ont été étudiés en rhéométrie capillaire, seuls le PS 1 et le PP ont été extrudés à l'aide de ce système.

Le montage expérimental se résume en une extrudeuse, suivie d'une pompe à engrenage et d'une filière plate transparente. Cette dernière permet la caractérisation de l'écoulement in situ, en amont de la sortie de filière. On utilise pour cela un système de biréfringence d'écoulement qui permet d'obtenir le champs de contraintes régnant dans l'écoulement. Le champs de vitesse peut être lui aussi déterminé par l'utilisation d'un système de vélocimétrie laser-Doppler : on peut mesurer des vitesses locales dans l'écoulement mais aussi leur évolution temporelle. Le schéma suivant résume les éléments du montage :

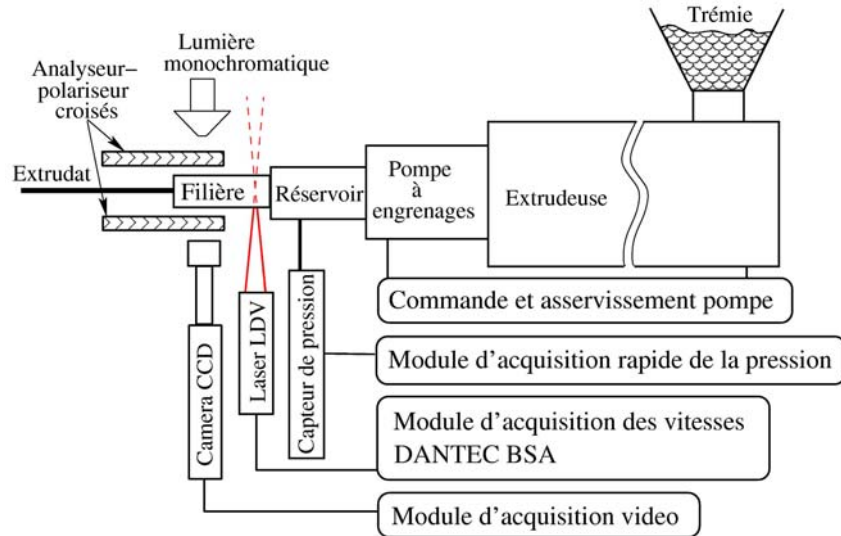


Fig. 2. 12 : Schéma du montage expérimental [7].

Robert [7] a, au cours de ses travaux de thèse, mis en place ce montage expérimental dans le sens où il a conçu, fabriqué et « éprouvé » l'outillage de la filière. En outre, il a effectué la mise en place du système de biréfringence et de vélocimétrie laser-Doppler en les adaptant à l'environnement de l'extrudeuse.

A travers ce chapitre, nous reprenons de façon brève les principales caractéristiques du dispositif expérimental et faisons référence à la thèse de Robert [7] pour de plus amples informations.

II. 3. 1. Description du montage expérimental d'extrusion

❖ Description du système d'extrusion

L'extrudeuse utilisée est une extrudeuse industrielle monovis *Kaufmann* de diamètre 40 mm et possède des éléments de montage classiques : trémie, fourreau, colliers chauffants thermostatés. On utilise une vis d'extrusion destinée à l'extrusion de polyoléfin. Elle possède un diamètre de 37 mm dans la zone de pompage contre 31 mm dans la zone d'alimentation. Le fourreau associé dispose de trois zones thermostatées.

Une pompe à engrenage est montée en sortie de vis. Elle permet d'extruder le polymère à un débit constant : une boucle de régulation permet de maintenir en aval de la pompe une pression constante. Cette pompe a ses limites puisqu'elle permet d'atteindre des débits d'extrusion de l'ordre de 2.5 kg/h au maximum. Le déclenchement des instabilités de volume suppose des débits d'écoulement suffisamment importants : la pompe n'a pas toujours été utilisée, ce qui nous a permis d'atteindre aisément des débits de 15 kg/h, soit des débits six fois plus importants qu'avec la pompe.

Notons que la mesure du débit d'écoulement s'effectue en sortie de filière, par le prélèvement chronométré de trois extrudats, pesés à l'aide d'une balance qui possède une précision de 0.01 g.

Le profil de température imposé pour l'extrusion du PS 1 à 180 °C prend les valeurs de 220, 210, 205, 190 et 185 °C dans les zones d'extrusion suivantes : zone d'alimentation de la vis, zone de compression, zone de pompage, pompe à engrenage et filière plate. En effet, le polymère situé dans les zones de pompage et de compression reste très visqueux et l'on est obligé d'extruder avec un profil de température dégressif de façon à ne pas imposer un couple trop important à l'entraînement de la vis. Un profil dégressif a aussi été utilisé pour l'extrusion du polypropylène. Comme en rhéométrie capillaire, la mesure de la température d'extrusion est effectuée en sortie de filière, à l'aide d'un thermocouple plongé dans la matière fondue.

❖ Géométrie de la filière plate

La géométrie de la filière plate est parallélépipédique et est représentée sur les figures 2. 13. Le premier schéma est en trois dimensions alors que le deuxième présente la géométrie d'écoulement dans un plan d'équation $Z = \text{cte}$.

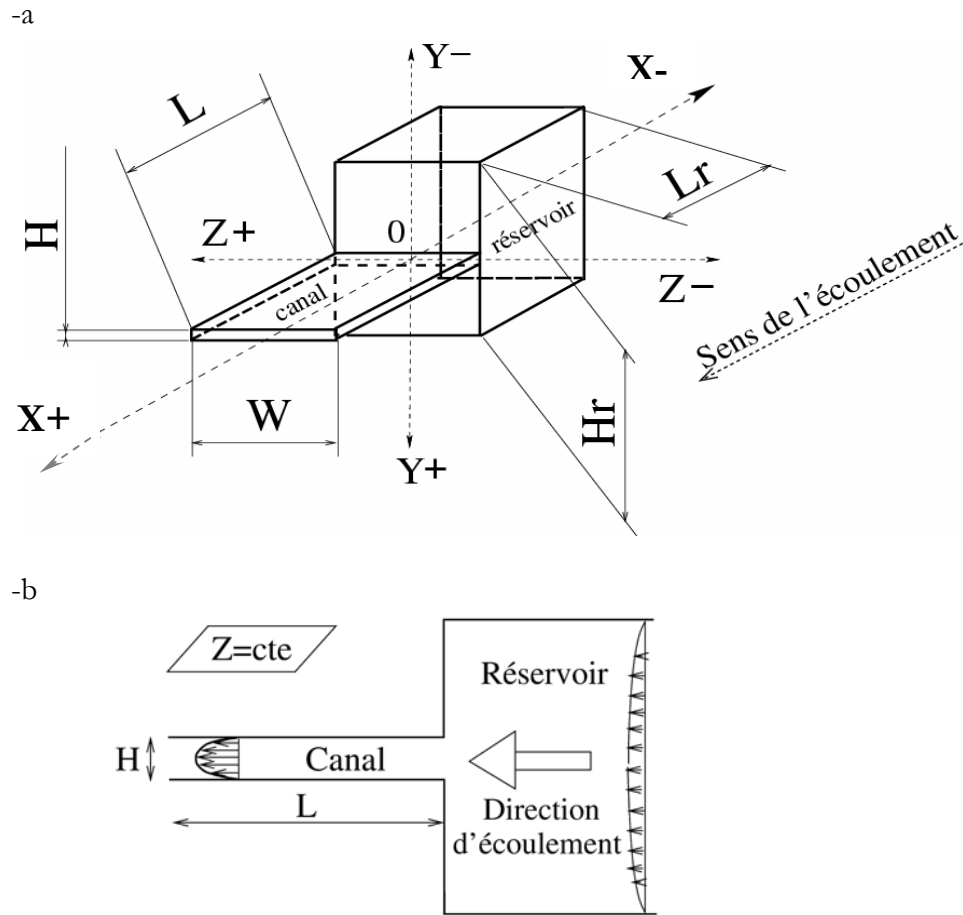


Fig. 2. 13 : Géométrie de la filière plate en trois dimensions (a) et dans le plan principal d'extrusion (b) [7].

Le polymère fondu issu de la pompe à engrenage ou de la vis d'Archimède se retrouve forcé dans une cavité parallélépipédique, appelée réservoir, qui possède une hauteur H_{res} de 18 mm. Une restriction de section suit cette même cavité : il s'agit de la contraction. On mesure une pression dans le réservoir à l'aide d'un capteur de pression.

Le site d'initiation du défaut volumique étant la région d'entrée de la filière, nous nous intéresserons, au cours de cette étude, tout particulièrement au comportement du polymère fondu dans la région du réservoir, aussi bien en terme de mesures de contraintes que de mesures de vitesses : l'écoulement en aval de la contraction ne sera que très peu décrit.

Le canal d'écoulement est lui aussi parallélépipédique, de même largeur W que le réservoir. Cette partie est déterminée par la forme de deux inserts d'acier, amovibles, et serrés sur le bâti de la filière plate, de part et d'autre du canal (dans la direction Y). Ainsi, il est possible de faire varier la géométrie d'écoulement du canal mais aussi la géométrie du convergent.

La visualisation de l'écoulement en chaque point du réservoir ou du canal est rendu possible grâce à l'utilisation de deux hublots en pyrex recuit, disposés de part et d'autre de la filière, aux plans d'équation $Z = +5.05$ et $Z = -5.05$ mm.

La direction X est la direction principale d'écoulement, la direction Z constitue la direction transverse, propre à l'épaisseur W de l'écoulement, alors que Y est associé à la position en hauteur dans l'écoulement. Nous appellerons « plan principal d'écoulement » le plan tel que $Z = 0$ (figure 2. 13. b.).

Le point situé au centre de la contraction possède des coordonnées géométriques nulles. Les positions positives $X+$ et les positions négatives $X-$ correspondent à des points situés en aval et en amont de la contraction, respectivement.

A partir de la mesure du débit massique Q_m , on calcule le taux de cisaillement apparent dans le canal d'écoulement ou débit réduit. Il est défini par la relation :

$$\dot{\gamma}_{app} = \frac{6Q_m}{\rho WH^2} \quad \text{Eq. 2. 11.}$$

Nous avons utilisé différentes configurations de façon à étudier l'influence de paramètres géométriques sur le déclenchement et le développement du défaut volumique. La largeur W est conservée d'une géométrie à l'autre et est toujours égale à 10.1 mm.

Nous nous sommes intéressés à l'influence du rapport de contraction sur l'initiation de l'instabilité. En conservant un rapport L/H constant et égal à 20.75, nous avons utilisé des géométries d'entrefer H de 0.5, 1.0 et 1.5 mm, correspondant à des rapports de contraction de 36/1, 18/1 et 12/1. Le rapport W/H est de l'ordre de 10 à 20 pour des entrefers H de 1.0 et 0.5 mm : l'écoulement n'est pas véritablement plan et apparaît plutôt tridimensionnel (il l'est encore plus dans le réservoir) si l'on en juge par les importants effets de bords que l'on observe en sortie de filière.

Le capteur de pression dont la position est fixe se retrouve ainsi soit à 34.6, 24.3 ou 13.9 mm en amont de la contraction, pour les géométries d'entrefer H de 0.5, 1.0 et 1.5 mm.

Nous avons également utilisé une géométrie d'écoulement singulière, consistant en une filière de type capillaire, constituée d'un seul insert métallique percé dans le sens de sa longueur. L'écoulement imposé dans le réservoir reste bien sûr parallélépipédique, puis devient axisymétrique dans le canal d'écoulement. Le diamètre D du canal est de 2.0 mm pour une longueur L de 35 mm. Cette géométrie nous a permis d'observer le défaut de volume en sortie de filière sous la forme d'un extrudat dont les distorsions axisymétriques sont plus facilement décelables que les rides régulières propres à un écoulement parallélépipédique, souvent masquées par les effets de bord.

De plus, lors d'une collaboration avec le laboratoire du *LSP* (Erlangen), nous avons utilisé une géométrie de filière légèrement différente de celles que l'on a pu utiliser au *CEMEF*. La largeur W est de 14.0 mm, l'entrefer H de 0.78 mm et la longueur L de 30.0 mm.

Enfin, il nous a semblé essentiel, au regard de la littérature, de jouer sur la forme du convergent de filière. Les géométries décrites précédemment possèdent toutes un demi-angle d'entrée de 90° (convergent à fond plat) comme indiqué sur la figure 2. 13. b.

Nous avons adopté quatre géométries d'entrée différentes comme présenté à la figure 2. 14.

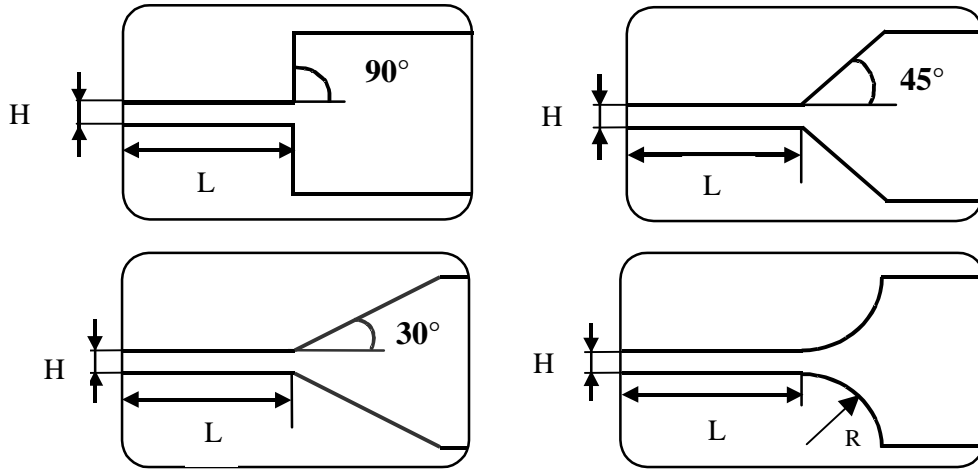


Fig. 2. 14 : Profil des convergents d'entrée utilisés.

Les demi-angles d'entrée prennent des valeurs de 90, 45 ou 30°. La dernière géométrie représentée possède un profil en forme de trompette avec un rayon de courbure R constant et sera dénommé « convergent doux » dans les chapitres suivants.

Des essais comparatifs ont été menés entre les divers profils et, dans ces conditions, la longueur effective L et l'entrefer H sont gardés constants d'une géométrie à l'autre.

Chacun des quatre convergents possède un entrefer H de 1.0 mm et une longueur L de 20.75 mm (le rayon R du convergent doux est de 8.5 mm). Une deuxième série de quatre convergents a été fabriquée possédant un rapport de contraction plus sévère, de 36/1. L'entrefer H associé n'est donc que de 0.5 mm et la longueur L de 10.38 mm (le rayon R du convergent doux est alors de 8.8 mm). Notons que, d'une série de profils à l'autre, le rapport L/H est constant et égal à 20.75.

Un récapitulatif des paramètres géométriques de chacune des filières utilisées figure en Annexe I.

II. 3. 2. Principe et méthodes de mesures associés à la biréfringence d'écoulement

❖ Principe optique de la mesure

La biréfringence d'écoulement s'explique par l'anisotropie optique générée par l'orientation des macromolécules au sein de l'écoulement. Dans un écoulement plan, si l'on définit par I et II les axes principaux associés au tenseur des indices de réfraction, axes pour lesquels le tenseur est diagonal, la biréfringence locale s'exprime par la relation [58] :

$$\Delta = n_I - n_{II} \quad \text{Eq. 2. 12.}$$

Après le passage à travers un matériau biréfringent d'épaisseur e , les deux composantes de la lumière polarisée linéairement présentent une différence de phase δ égale à :

$$\delta = \frac{2\pi e}{\lambda} (n_I - n_{II}) \quad \text{Eq. 2. 13.}$$

où λ est la longueur d'onde de la lumière monochromatique utilisée.

Si l'on utilise un montage expérimental tel qu'une lumière monochromatique polarisée linéairement traverse un fluide anisotrope puis un analyseur, le déphasage entre les composantes du rayon lumineux, crée par la traversée du milieu anisotrope, se traduit pour l'observateur par un

système d'interférences, présentant un certain nombre de raies d'extinction [5]. L'intensité reçue par l'observateur s'exprime par la relation :

$$I = I_0 \sin^2(2\beta) \sin^2\left(\frac{\delta}{2}\right) \quad \text{Eq. 2. 14.}$$

où I_0 est l'intensité lumineuse du rayon émis initialement, β est l'angle entre la direction du rayon incident polarisé et la direction principale du tenseur des indices de réfraction.

D'après l'équation 2. 14., on peut observer des bandes d'extinction sous deux conditions :

- $\beta = 0, \frac{\pi}{2}, \pi, \frac{3\pi}{2} \dots$ Les franges associées correspondent à la direction principale du tenseur des indices de réfraction : ce sont des isoclines. Ces franges peuvent être éliminées en installant sur le trajet lumineux des lames quart d'onde qui permettent de polariser circulairement la lumière. L'intensité perçue s'écrit alors :

$$I = I_0 \sin^2\left(\frac{\delta}{2}\right) \quad \text{Eq. 2. 15.}$$

- $\delta = 0, 2\pi, 4\pi \dots$ Les franges correspondantes sont des isochromes. D'après l'équation 2. 13, on remarque qu'il existe une relation simple avec la première différence des indices de réfractions principaux :

$$n_I - n_{II} = \frac{k\lambda}{e} \quad \text{Eq. 2. 16.}$$

Ce sont précisément ces franges auxquelles nous nous intéresserons puisqu'elles sont directement reliées au champ de contraintes. En effet, la photoélasticimétrie solide précise que les axes principaux du tenseur des contraintes et du tenseur des indices de réfraction sont parallèles et que les termes déviatoriques de chacun des tenseurs sont proportionnels :

$$\underline{n} = C \underline{\sigma} \quad \text{Eq. 2. 17.}$$

avec C le coefficient de Brewster qui dépend du matériau et de la température d'écoulement. En deux dimensions, la biréfringence Δ est directement reliée à la première différence de contraintes principales :

$$\Delta = n_I - n_{II} = C(\sigma_I - \sigma_{II}) \quad \text{Eq. 2. 18.}$$

Par conséquent, la première différence de contraintes principales s'écrit simplement :

$$\sigma_I - \sigma_{II} = \frac{k\lambda}{Ce} \quad \text{Eq. 2. 19.}$$

avec k ($k = 0, 1, 2, \dots$) que l'on appelle l'ordre de la frange.

Rappelons néanmoins que les contraintes sont exprimées dans des directions dites principales pour lesquelles le tenseur est diagonal : ces axes ne coïncident généralement pas avec les axes d'observation du laboratoire. Il existe un angle de rotation χ entre les deux systèmes.

Si l'on considère un écoulement plan de type Poiseuille tel que X soit la direction d'écoulement et Y la direction de cisaillement, pour un fluide viscoélastique, l'angle χ vaut 45° le long de l'axe principal de symétrie. Le long de cet axe, la contrainte de cisaillement est nulle et la biréfringence s'exprime en fonction de la première différence de contraintes normales :

$$\Delta = n_I - n_{II} = C(\sigma_{xx} - \sigma_{yy}) \quad \text{Eq. 2. 20.}$$

Cette relation décrit de façon simple la mesure de la première différence de contraintes normales le long de l'axe de symétrie, sous réserve de connaître les paramètres C , λ , et e . A travers cette étude, nous nous attacherons entre autre à décrire l'état de contrainte sur l'axe de symétrie.

❖ Description du montage expérimental utilisé

Nous avons utilisé un montage classique dont les éléments apparaissent ci-dessous :

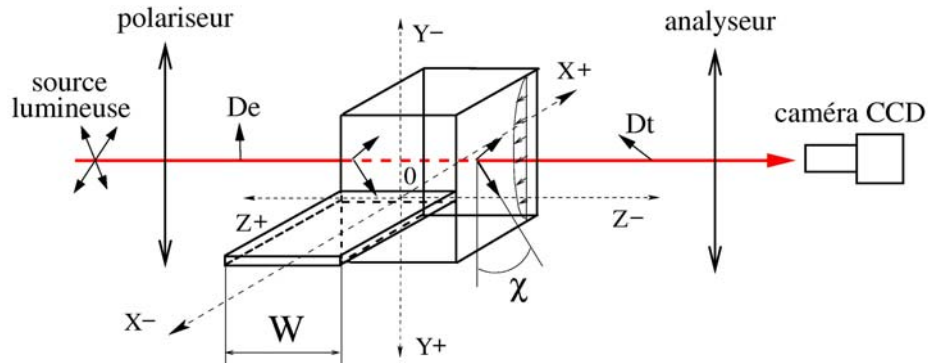


Fig. 2. 15 : Schéma de principe de la biréfringence d'écoulement [7].

La source monochromatique est une source de sodium qui possède une longueur d'onde λ de 589 nm. L'élimination des isoclines est assurée par l'utilisation de lames quart d'onde qui sont intégrées au polariseur et à l'analyseur du montage. L'épaisseur de matière biréfringente traversée correspond à la largeur de la filière transparente W de 10.1 mm.

Le coefficient de Brewster C que nous avons utilisé pour les deux matériaux est issu de la littérature [58, 59] et prend les valeurs de $0.8 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{N}^{-1}$ pour le polypropylène à 200 °C et $4 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{N}^{-1}$ pour le polystyrène à 180 °C.

Voici typiquement comment s'organisent les franges de biréfringence au sein de l'écoulement dans le réservoir et le canal :

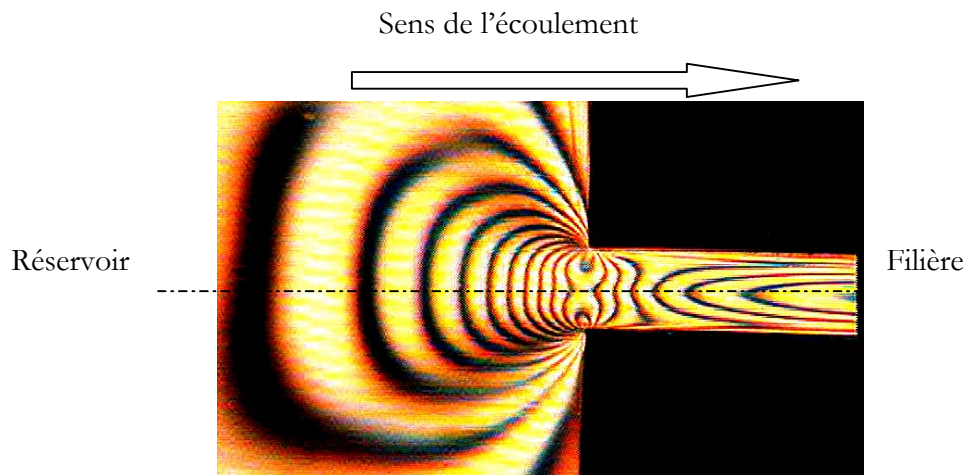


Fig. 2. 16 : Cliché de biréfringence du polypropylène, extrudé à 200 °C, à un taux de cisaillement apparent de 153 s^{-1} ($L/H = 20.75$, $H = 1.5 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$).

Le calcul de la première différence de contraintes normales le long de l'axe de symétrie nécessite la connaissance de l'ordre k de l'isochrome : la première frange que l'écoulement présente alors qu'il est forcé dans le convergent est d'ordre 1. Les suivantes sont d'ordre supérieur ; la frange d'ordre maximal est située à la contraction où la concentration de contrainte est la plus importante. Dans le canal d'écoulement, l'ordre k décroît : on assiste à la relaxation des contraintes de long du chenal.

❖ Traitement et analyse du cliché de biréfringence

Le cliché de biréfringence est enregistré grâce à une caméra numérique qui nous permet de capturer le développement de phénomènes instationnaires en temps réel. Elle permet en effet la capture de 24 images par seconde et s'est avérée adaptée à la fréquence des séquences instationnaires que nous voulions décrire (la fréquence des phénomènes étudiés reste généralement très inférieure à 1 Hz).

Un système d'acquisition vidéo assisté du logiciel de montage vidéo « Adobe première » permet une conversion des films initialement générés au format *Vk7* en format *mpeg* ou bien à l'inverse, permet de scinder les films en une succession d'images au format *Bitmap*, à raison bien entendu de 24 images par seconde au maximum. Cette dernière étape permet notamment d'estimer la fréquence des phénomènes instationnaires étudiés.

Le traitement des images est effectué par l'intermédiaire du logiciel d'analyse d'image « Visilog ». Il consiste essentiellement à mesurer la position des isochromes, en particulier le long de l'axe de symétrie. Pour cela, on procède à la conversion de l'image numérique de dimension 703 par 559 pixels en niveaux de gris. Selon une aire ou un segment d'image défini, on active un processus de décodage des maximums et minimums de niveaux de gris. En l'occurrence, le long de l'axe de symétrie, on est à même de quantifier la position de chaque frange en pixel, correspondant aux minimums de niveaux de gris. La conversion de la position axiale en millimètre permet d'obtenir l'abscisse de courbes représentatives de la première différence de contraintes normales dans le réservoir et dans le canal d'écoulement :

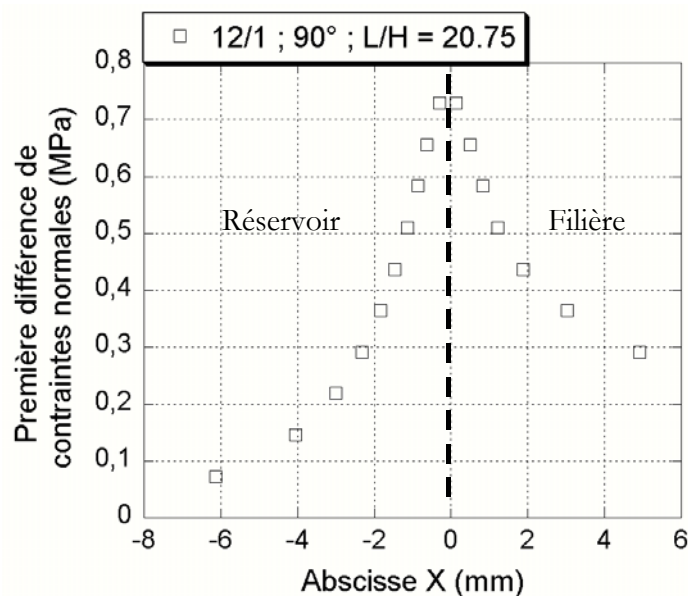


Fig. 2. 17 : Variation de la première différence de contraintes normales le long de l'axe de symétrie pour le PP, à un taux de cisaillement apparent de 153 s^{-1} et à 200°C ($L/H = 20.75$, $H = 1.5 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$).

Ce graphique est le résultat du traitement d'image effectué sur le cliché de biréfringence présenté figure 2. 16. Il illustre l'augmentation progressive de la contrainte au sein du réservoir, le maximum atteint à la contraction et la relaxation de contrainte le long du canal.

II. 3. 3. Principe et méthodes de mesures associés à la vélocimétrie laser-Doppler

❖ Principe de la mesure

Le principe de mesure d'une vitesse par vélocimétrie laser-Doppler (LDV) est basé sur l'effet Doppler qui repose sur la variation apparente de la fréquence d'une onde émise par une source en mouvement, animée d'une vitesse donnée par rapport à un observateur fixe.

Le système que nous utilisons permet la mesure d'une vitesse instantanée locale dans une direction déterminée de l'espace et se caractérise par sa haute résolution spatiale et temporelle.

On utilise deux faisceaux provenant du même laser dont le croisement dans l'écoulement est explicité sur le schéma suivant :

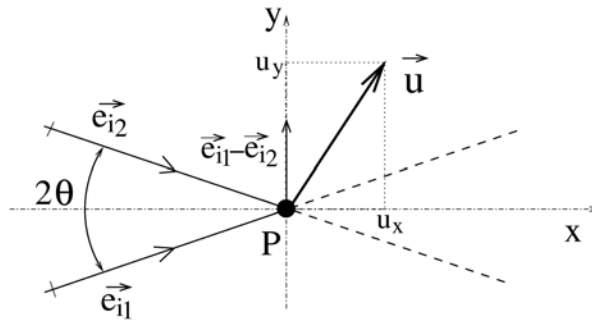


Fig. 2. 18 : Principe de mesure de la composante de vitesse u_y , au point P animé d'une vitesse \vec{u} [7].

L'angle 2θ correspond à l'angle formé par les deux faisceaux laser. On mesure une composante u_y du vecteur vitesse \vec{u} , portée par la direction y qui est la bissectrice de l'angle supplémentaire à l'angle 2θ . La relation suivante permet d'exprimer cette composante :

$$u_y = \frac{\lambda \Delta f}{2 \sin \theta} = \frac{\lambda_0 \Delta f}{2 \sin \theta_0} \quad \text{Eq. 2. 21.}$$

avec θ_0 , supposé petit, le demi-angle formé par les deux faisceaux dans l'air, λ_0 la longueur d'onde du laser et Δf défini comme ci-dessous :

$$\Delta f = f_{s1} - f_{s2} \quad \text{Eq. 2. 22.}$$

où f_{s1} et f_{s2} sont les fréquences diffusées par la particule dans les directions \vec{e}_{i1} et \vec{e}_{i2} ; Δf est finalement la fréquence diffusée par la particule dans la direction $\vec{e}_{i1} - \vec{e}_{i2}$ (voir figure 2. 18).

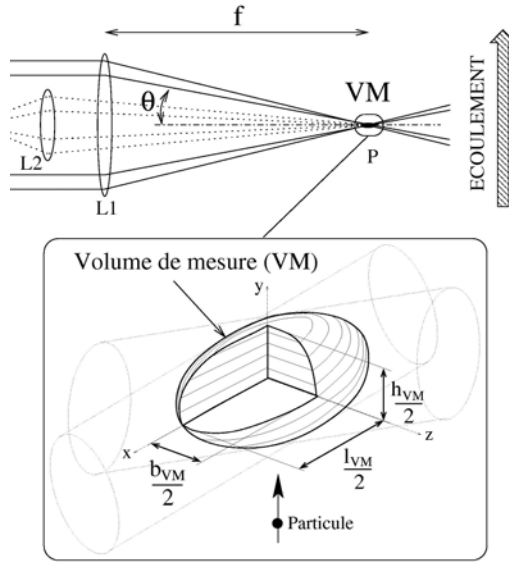
La mesure d'une vitesse nécessite, dans un premier temps, la connaissance de la longueur d'onde du faisceau laser ainsi que de l'angle $2\theta_0$ qui sont fournis par le constructeur. Dans un deuxième temps, la mesure d'une composante de vitesse se résume à la mesure de la grandeur Δf .

Cette mesure est assurée par diffusion arrière grâce à la lentille L_2 (figure 2. 19) qui collecte la lumière diffusée par la particule dans la direction $\vec{e}_{i1} - \vec{e}_{i2}$, avant de transmettre l'information au

système électronique. Ce dernier permet l'amplification, le filtrage puis l'analyse du signal émis et fait l'objet d'une plus large description dans la thèse de Robert [7].

❖ Précision de la mesure de vitesse

Le croisement des faisceaux dans l'écoulement du fluide donne un volume de mesure dont les dimensions sont résumées ci-après :



Longueur $l_{VM} = 637 \mu m$

Largeur $b_{VM} = 54 \mu m$

Hauteur $h_{VM} = 54 \mu m$

Fig. 2. 19 : Volume de mesure généré par le croisement des faisceaux laser [7].

Ainsi, la particule animée de mouvement dont on souhaite mesurer la vitesse traverse ce volume de mesure : il est souhaitable que la taille de la particule soit de l'ordre du micron.

Les polymères que nous avons extrudés présentaient naturellement de fines particules (résidus de catalyse, poussières diverses) si bien que nous n'avons pas eu à introduire de particules artificielles comme des billes de verre creuses, couramment utilisées dans la littérature.

De plus, rappelons que l'on peut mesurer des vitesses instantanées locales dans l'écoulement, de même qu'il est possible de mesurer la variation temporelle de ces vitesses. En effet, si l'on recueille toutes les vitesses ponctuelles relatives à chaque particule traversant le volume de mesure et que l'on moyenne ces valeurs, on peut obtenir une estimation de la vitesse locale d'un point de l'écoulement.

Bien entendu, pour des temps de mesure imposés importants et pour un ensemencement de l'écoulement dense (dans une limite raisonnable telle que les particules ne gênent pas l'écoulement), la précision de la mesure est accrue.

La résolution spatiale Δd est donc d'environ $50 \mu m$ seulement. La résolution temporelle Δt est tributaire de la vitesse d'écoulement V que l'on mesure :

$$\Delta t = \frac{\Delta d}{V} \quad \text{Eq. 2. 23.}$$

Comme l'évoque Robert [7], la résolution temporelle peut atteindre des valeurs de l'ordre de 5.4 et de 200 ms pour des vitesses respectives de 10 mm/s et de $250 \mu m/s$. Ainsi, la précision de mesure est d'autant plus importante que les vitesses d'écoulement sont élevées.

❖ Description du dispositif expérimental

La tête optique est reliée à la source laser par une fibre optique et est située à proximité de la filière plate, dans la direction transverse Z de l'écoulement. Elle peut se déplacer à l'aide d'un banc de réglage asservi en translation dans les directions X et Y .

D'après le principe de mesure détaillé précédemment, la mesure d'une vitesse dans la direction Y relative à la hauteur de l'écoulement (figure 2. 13) va nécessiter la rotation d'un angle de $\frac{\pi}{2}$ de la tête optique par rapport à la configuration adoptée pour mesurer une vitesse dans la direction principale X de l'écoulement.

Le réglage de la position du volume de mesure dans la direction Z s'effectue manuellement par l'intermédiaire d'une vis micrométrique. Dans notre cas, nous avons toujours utilisé un réglage en Z tel que la mesure ait lieu au centre de l'écoulement ($Z = 0$).

Bien entendu, le positionnement et donc l'initialisation des coordonnées du volume de mesure dans l'espace doit être effectué dans le milieu dans lequel est réalisée la mesure, soit au sein du polymère fondu.

Comme le précise Robert [7], la mise en place du système de vélocimétrie doit être effectuée de façon minutieuse, de telle sorte que les axes de déplacement de la tête optique soient les mêmes que ceux de la filière plate.

Il est alors possible d'imposer un déplacement automatisé de la tête optique dans les directions X et Y , de telle sorte que dans un plan d'équation $Z = \text{cte}$, on balaye des points matériels selon une grille plane, possédant un pas de déplacement et des positions extrêmes prédéfinies. C'est ainsi que l'on construit des profils de vitesse.

La mesure la plus courante au cours de cette étude est celle de la vitesse dans la direction principale d'écoulement X , pour différentes abscisses X , au centre de la largeur W d'écoulement :

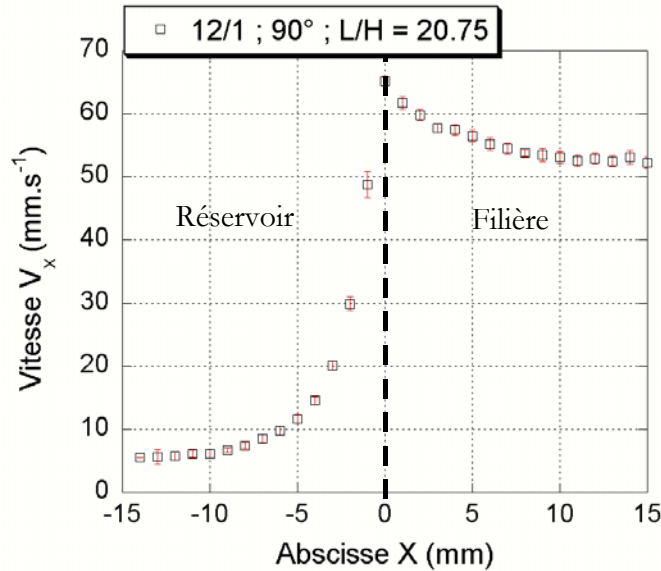


Fig. 2. 20 : Profil de vitesse $V_X(X)$ du PP, à un taux de cisaillement apparent de 153 s^{-1} et à 200°C ($L/H = 20.75$, $H = 1.5 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$).

L'augmentation de la contrainte le long du réservoir observée en biréfringence d'écoulement se traduit par une augmentation de la vitesse qui atteint son maximum à la contraction. De plus, on

peut noter que, dans le canal d'écoulement, la courbe présente un « overshoot » de vitesse conséquent.

Cette mesure permet aussi de quantifier l'accélération que subit le fluide à son approche de la contraction : des taux de déformation ainsi que des déformations ont pu être estimés à partir de tels profils.

Cette mesure a été effectuée exactement dans les mêmes conditions (température et débit) que les expériences menées en biréfringence d'écoulement. En effet, alors que le banc de mesure LDV est difficilement déplaçable, le dispositif de biréfringence est complètement amovible puisque monté sur une table munie de roulettes. Pour chaque débit d'extrusion, il a été possible de coupler mesures de vitesses et de champs de contraintes par biréfringence d'écoulement.

CHAPITRE III

ETUDE DU DEFAUT VOLUMIQUE EN ECOULEMENT AXISYMETRIQUE

CHAPITRE III

ETUDE DU DEFAUT VOLUMIQUE EN ECOULEMENT AXISYMETRIQUE

Résumé

Cette partie présente les principaux résultats obtenus en rhéométrie capillaire. Dans la chronologie des travaux menés, le PS 1 a fait l'objet d'une caractérisation poussée, essentiellement appliquée au défaut hélicoïdal. L'étude successive des deux autres matériaux a eu pour but de confirmer ou d'infirmer les principaux résultats observés avec le PS 1.

De plus, cette étude nous a permis de mieux cerner les paramètres d'extrusion (température, longueur et diamètre d'écoulement, angle de convergent) déterminants quant au déclenchement de l'instabilité. Ces résultats préliminaires ont en effet fortement conditionné les expériences menées en filière plate transparente où il est possible de caractériser l'écoulement amont. Notons que l'étude en rhéométrie capillaire visant à caractériser le comportement du fluide en sortie de filière nous a permis de mettre en évidence de nombreuses propriétés propres à l'instabilité hélicoïdale.

Table des Matières

III. 1. Courbes d'écoulement apparentes et aspect des extrudats	62
III. 1. 1. Courbes d'écoulement apparentes pour différents rapports de longueur L/D	62
III. 1. 2. Déclenchement du défaut hélicoïdal	64
III. 1. 3. Courbes d'écoulement apparentes pour différents diamètres D	65
III. 2. Courbes d'écoulement en contrainte réelle	66
III. 3. Etude et quantification du défaut hélicoïdal	67
III. 3. 1. Méthode de quantification du défaut hélicoïdal	67
III. 3. 2. Influence de la longueur d'écoulement sur la morphologie du défaut.....	68
III. 3. 3. Influence du diamètre de filière sur la morphologie du défaut	71
III. 4. Influence de la température	73
III. 4. 1. Déclenchement du défaut hélicoïdal	73
III. 4. 2. Quantification du défaut hélicoïdal	75
III. 5. Influence de l'angle d'entrée de la filière.....	78
III. 5. 1. Déclenchement du défaut hélicoïdal	78
III. 5. 2. Quantification du défaut hélicoïdal	79
III. 6. Critères de déclenchement de l'instabilité hélicoïdale.....	80
III. 6. 1. Pression critique	81

III. 6. 2. Contrainte de cisaillement critique	82
III. 6. 3. Contrainte élongationnelle critique.....	83
III. 6. 4. Taux de déformation élongationnel critique.....	85
III. 6. 5. Nombre de Weissenberg critique	86
III. 7. Etude comparative des différents polymères utilisés.....	89
III. 7. 1. Comparaison du PS 1 et du PS 2.....	89
III. 7. 2. Comparaison du PS 1 et du PP.....	90
III. 8. Conclusion	92

III. 1. Courbes d'écoulement apparentes et aspect des extrudats

Le Rhéoplast[®] (Courbon, France) a été utilisé pour caractériser le comportement des polymères présentés dans le deuxième chapitre. L'étude présente consiste en la mesure de grandeurs telles que le débit et la pression, couplée avec le prélèvement d'extrudats affectés ou non du défaut volumique. A chaque débit d'écoulement est associé un échantillon d'extrudat, refroidi à l'air ambiant.

Cette présentation s'articule essentiellement autour des résultats obtenus avec le PS 1. Lorsque la dénomination du polymère extrudé n'est pas précisée, il s'agit par défaut de ce matériau. Ces résultats ont fait l'objet d'une publication dans la revue Rhéologie [60].

Les expériences ont été effectuées, dans le cas présent, pour une température de 200 °C. Les courbes d'écoulement apparentes représentent la variation de la pression mesurée en amont du convergent en fonction du taux de cisaillement apparent. Rappelons que cette dernière grandeur est proportionnelle au débit d'écoulement imposé.

III. 1. 1. Courbes d'écoulement apparentes pour différents rapports de longueur L/D

Les capillaires utilisés possèdent un diamètre D de 1.39 mm, un convergent de demi-angle 45°, et différents rapports de longueur L/D :

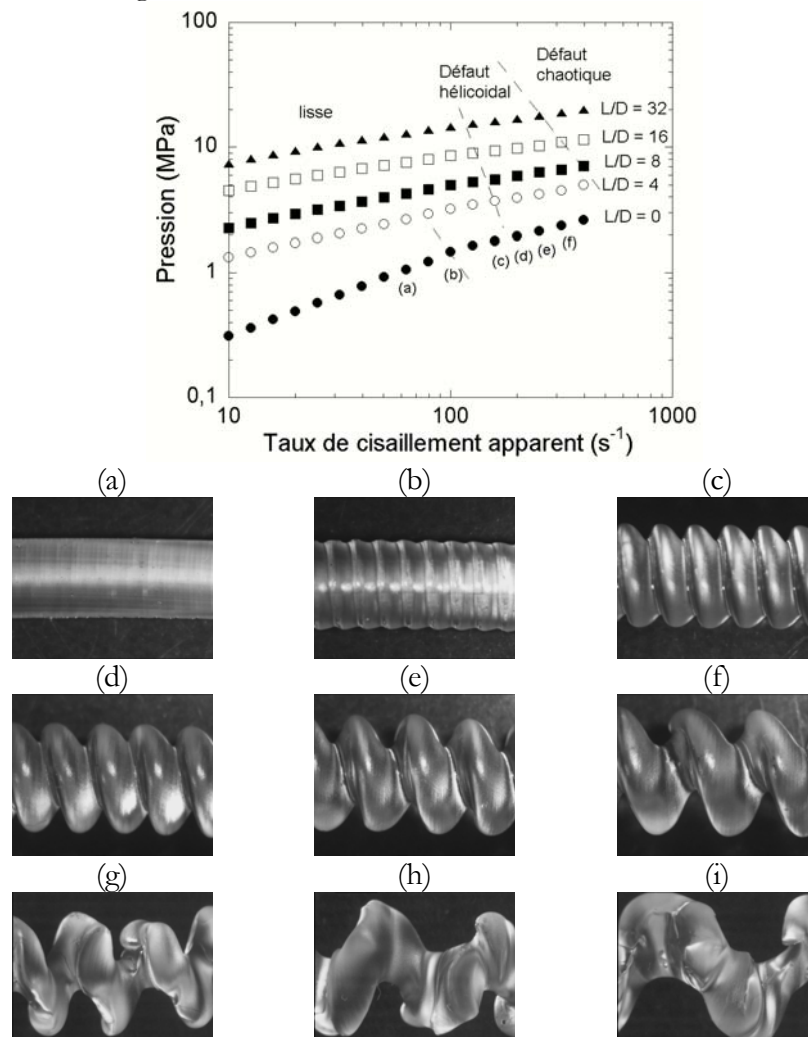


Fig. 3. 1 : Courbes d'écoulement apparentes à 200 °C et extrudats associés ($D = 1.39$ mm, $L/D \approx 0$ et $\alpha = 45^\circ$).

Sur les courbes d'écoulement sont indiquées les différentes zones de débit où apparaissent les défauts (séparées par des traits). Figurent par ailleurs quelques photos des extrudats prélevés pour différents débits d'écoulement dans le cas du rapport L/D nul.

A très faible débit, l'extrudat est lisse, aussi bien visuellement qu'au toucher (figure 3. 1. a). Pour un taux de cisaillement de l'ordre de 100 s^{-1} , on constate qu'une légère hélice se forme sur la surface de l'extrudat (figure 3. 1. b). Pour des débits plus importants, l'hélice formée devient de plus en plus prononcée : le pas et le diamètre hélicoïdaux augmentent. Elle se caractérise par une périodicité que l'on peut qualifier de rigoureuse.

Pour des taux de cisaillement supérieurs à 316 s^{-1} , l'hélice dégénère : la forme géométrique n'est plus respectée. Elle présente cependant toujours une organisation grossièrement périodique : le défaut se situe alors dans la transition entre l'instabilité hélicoïdale et chaotique (figures 3. 1. g et 3. 1. h). Pour des débits encore plus élevés, l'extrudat devient complètement chaotique et il n'existe plus aucune organisation périodique.

Les morphologies que nous venons de décrire sont associées au développement des défauts de volume et ceci quel que soit le rapport de longueur L/D considéré. Précisons par ailleurs que les expériences menées sur le PS 2 avec des filières de demi-angle d'entrée de 45° concordent très largement avec celles faites sur le PS 1. Le polypropylène présente lui une morphologie légèrement différente, comme en témoigne la figure 3. 2.

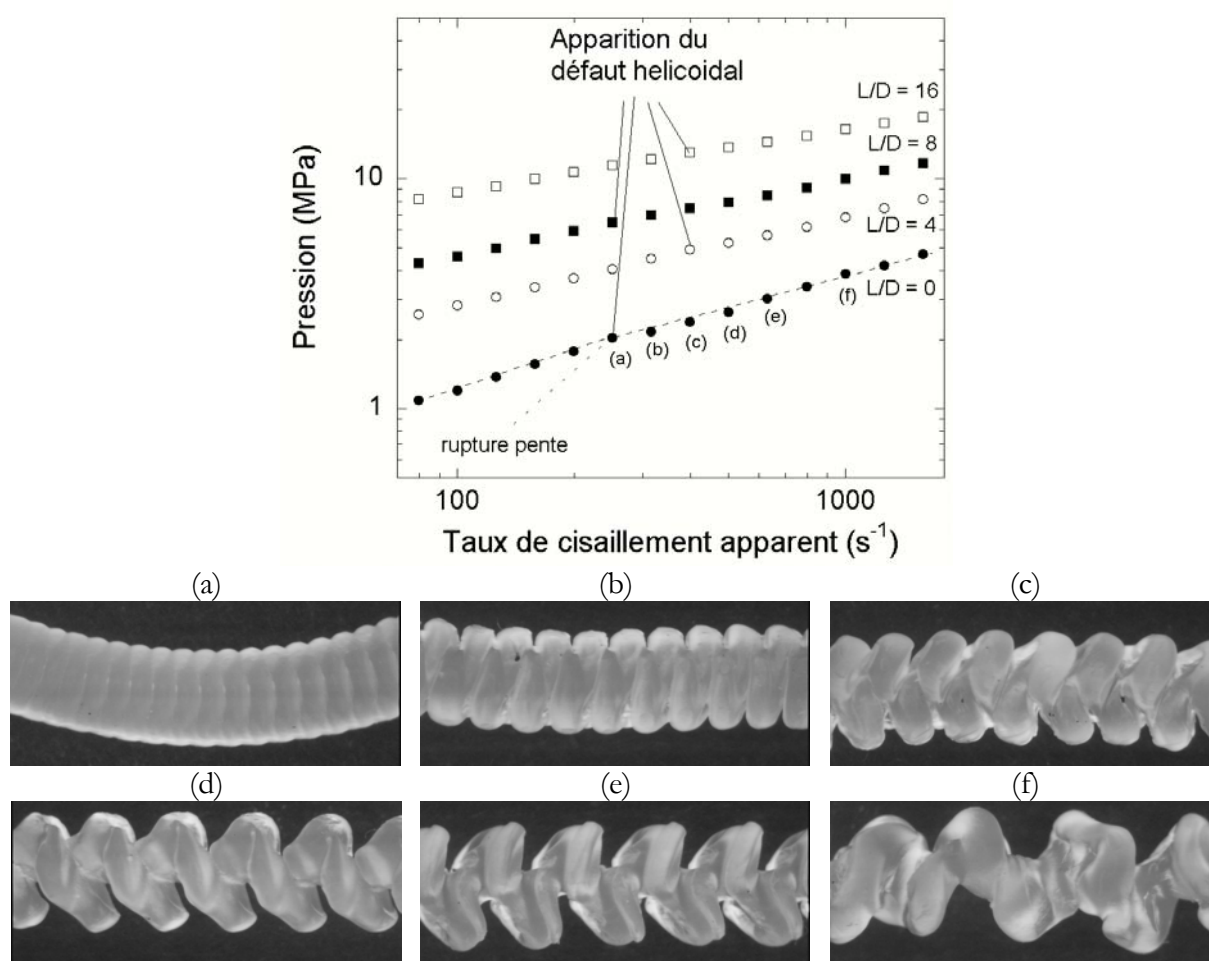


Fig. 3. 2 : Courbe d'écoulement apparente et aspect des extrudats de polypropylène extrudé à 200°C , ($D = 0.93 \text{ mm}$, $L/D \approx 0$ et $\alpha = 90^\circ$).

La forme parfaite de l'hélicoïde n'est pas véritablement respectée ; on remarque que l'enchaînement des distorsions est moins régulier, comme illustré sur la troisième figure. La quantification du défaut hélicoïdal s'est donc avérée plus délicate (voir paragraphe III. 3).

Sur la figure 3. 1, on remarque qu'il existe une rupture de pente prononcée, dans le cas du rapport L/D nul, près de la transition entre un extrudat d'aspect lisse et un extrudat présentant une légère hélice (figure 3. 1. b). La rupture de pente s'atténue si l'on considère des rapports de longueurs L/D plus élevés. Ces observations sont caractéristiques de ce type d'instabilité [1-4] et sont aussi valables pour les deux autres polymères étudiés (voir figure 3. 2 et Annexe II).

A chaque prélèvement d'extrudat, le sens de l'écoulement a été relevé. On remarque que le sens de l'hélice (droite ou gauche) semble aléatoire à l'apparition du défaut hélicoïdal (aucune corrélation n'a pu être effectuée entre le sens de l'hélice relevé et les différentes géométries utilisées (L/D , D)). Malgré tout, une fois que la première hélice a été formée dans un certain sens, les hélices formées pour des débits plus élevés conservent le même sens. Ce phénomène est observable sur la séquence de photos de la figure 3. 1.

De plus, la taille du réservoir qui est imposée par la position du piston d'injection n'a pas d'influence sur la morphologie du défaut. La compressibilité du matériau est-elle un paramètre peu déterminant, d'une part sur l'initiation du défaut et d'autre part sur son développement.

Enfin, on note, d'après les traits séparant les différentes zones de débits critiques, que le taux de cisaillement apparent critique associé au déclenchement du défaut hélicoïdal décroît avec le rapport de longueur L/D . Il prend successivement les valeurs de 141, 138, 135 et 123 s^{-1} pour des rapports L/D de 4, 8, 16 et 32. L'utilisation d'une filière plus courte permet donc de repousser l'instabilité à des débits légèrement plus importants (notons que cette observation n'est pas valable dans le cas de la filière orifice pour laquelle le déclenchement du défaut est singulier, quel que soit le diamètre de filière considéré). Cette observation est confirmée par l'étude de l'autre polystyrène (PS 2), comme présenté en Annexe II.

A l'inverse, Ramsteiner [42] a montré sur des polystyrènes que la longueur d'écoulement n'avait pas d'influence sur le déclenchement du défaut hélicoïdal. Par ailleurs, il ne semble pas exister de dépendance notable de la longueur sur l'apparition du défaut hélicoïdal pour le polypropylène (figure 3. 2). De plus, les taux de cisaillement critiques des polystyrènes étudiés ne varient que très peu d'une longueur à l'autre (figures 3. 1 et A. 2.). Par conséquent, s'il existe un effet de la longueur d'écoulement, il reste très faible. La longueur n'apparaît pas comme un paramètre géométrique déterminant ; par la suite, nous ne nous attacherons que très peu à décrire son influence.

III. 1. 2. Déclenchement du défaut hélicoïdal

Les premières courbes d'écoulement apparentes nous ont permis d'avoir une vision globale de l'apparition et du développement des défauts hélicoïdal et chaotique. Nous nous sommes ensuite attachés à décrire de façon précise le déclenchement du défaut hélicoïdal, en faisant varier le taux de cisaillement apparent par échelon de 5 s^{-1} . Les photos ci-après illustrent l'évolution de la morphologie des extrudats dans la zone de déclenchement du défaut hélicoïdal.

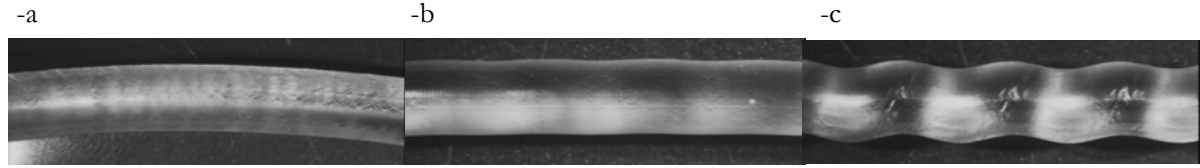


Fig. 3. 3 : Evolution de l'aspect des extrudats dans la zone de transition lisse/hélice, à 200 °C ($D = 3.0$ mm, $L/D = 4$ et $\alpha = 45^\circ$). (a) : $\dot{\gamma}_{app} = 102 \text{ s}^{-1}$; (b) : $\dot{\gamma}_{app} = 107 \text{ s}^{-1}$; (c) : $\dot{\gamma}_{app} = 112 \text{ s}^{-1}$.

La deuxième photo montre la présence d'une ondulation légère apparaissant sur l'échantillon ; nous estimons donc que l'apparition du défaut hélicoïdal a lieu, dans le cadre de ces essais, pour un taux de cisaillement critique de 107 s^{-1} . Le déclenchement du défaut est assez rapide, étant donné le peu de variation de débit entre les trois prélèvements.

III. 1. 3. Courbes d'écoulement apparentes pour différents diamètres D

Les filières utilisées possèdent un rapport de longueur L/D nul, et différents diamètres D de 0.93, 1.39, 2.0 et 3.0 mm.

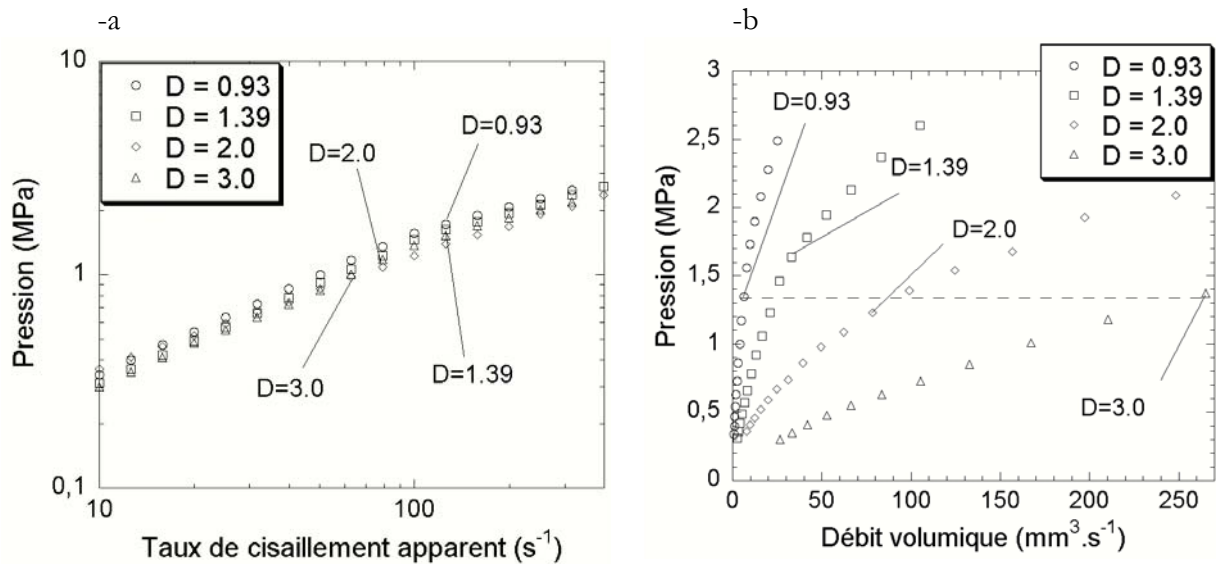


Fig. 3. 4 : Courbes d'écoulement apparentes pour différents diamètres, à 200 °C, en fonction du taux de cisaillement apparent (a) et du débit volumique imposé (b) ($L/D \approx 0$ et $\alpha = 45^\circ$).

Nous avons par ailleurs utilisé ces quatre mêmes diamètres pour des rapports de longueur de 4, 8, 16 et 32. Les résultats figurent en Annexe III. 1 et aboutissent aux mêmes conclusions que pour la filière orifice.

Les courbes d'écoulement apparentes de chaque diamètre possèdent la même allure et sont légèrement décalées les unes par rapport aux autres (figure 3. 4. a), sachant que, en théorie, les pertes de charges mesurées les plus importantes sont associées au diamètre le plus faible. Ce classement devrait apparaître sur le graphique, les imprécisions de mesure ne nous permettent pas de le distinguer.

On a repéré sur les différentes courbes l'apparition du défaut hélicoïdal par des traits noirs. Plus le diamètre est faible et plus le déclenchement de l'instabilité est repoussé à des taux de

cisaillement élevés. Sur la figure 3. 4. b, on remarque, à l'inverse, que le débit volumique critique diminue avec l'utilisation de faibles diamètres.

Comme nous l'avons vu au chapitre I, l'élongation que subit le fluide dans la restriction d'entrée conditionne probablement sa déstabilisation. Il apparaît donc logique qu'un rapport de contraction sévère soumette l'écoulement dans le convergent à d'importantes sollicitations élongationnelles. Les résultats expérimentaux de la figure 3. 4. b s'expliquent par le fait que l'utilisation d'un faible diamètre entraîne un rapport de contraction élevé (de 17/1 pour un diamètre D de 0.93 mm contre 5/1 pour un diamètre D de 3.0 mm), plus propice à déclencher une déstabilisation de l'écoulement d'entrée. Le rapport de contraction de 5/1 permet ainsi d'atteindre des débits d'écoulement critiques 42 fois plus importants qu'avec le rapport de contraction 17/1. La même étude a été menée avec le PP et le PS 2 : les conclusions sont similaires et figurent en Annexe III. 2 et III. 3.

Notons néanmoins qu'il ne nous a pas été possible de faire la distinction entre l'influence du rapport de contraction et celle du diamètre. En effet, la taille du réservoir est fixe et immuable. Ainsi, nous n'avons pas réellement fait varier le rapport de contraction exclusivement puisque le diamètre de filière changeait aussi. Le même problème se posera en filière plate transparente. L'interprétation des résultats présentés suppose donc que l'influence du diamètre sur le déclenchement du défaut est négligeable par rapport à celle due au rapport de contraction. La littérature, qui décrit l'initiation du défaut d'entrée comme la conséquence directe d'une sollicitation élongationnelle trop importante à la contraction, conforte cette hypothèse [1-4].

Le taux de cisaillement apparent traduit le débit réduit de l'écoulement, notamment en aval de la contraction, faisant intervenir la géométrie du capillaire. Cette grandeur semble inappropriée pour décrire les phénomènes impliqués en amont de la contraction. Lors d'études liées à l'influence du rapport de contraction, nous raisonnerons dorénavant essentiellement en terme de débits volumiques : cette grandeur imposée par le déplacement du piston d'injection nous permet de comparer quantitativement des conditions d'écoulement semblables dans le convergent.

Un critère caractéristique plus approprié pour caractériser le déclenchement de l'instabilité hélicoïdale demeure la pression mesurée, comme en témoignent les deux graphiques. La ligne pointillée, tracée sur la figure 3. 4. b, témoigne d'une valeur moyenne des pressions critiques associées à chaque diamètre qui s'élève approximativement à 1.4 MPa.

III. 2. Courbes d'écoulement en contrainte réelle

Les pressions mesurées ont pu être corrigées par la méthode de Bagley et les contraintes à la paroi ont été calculées, dans le cas des diamètres 0.93, 1.39, 2.0 et 3.0 mm. La figure 3. 5 présente les résultats obtenus.

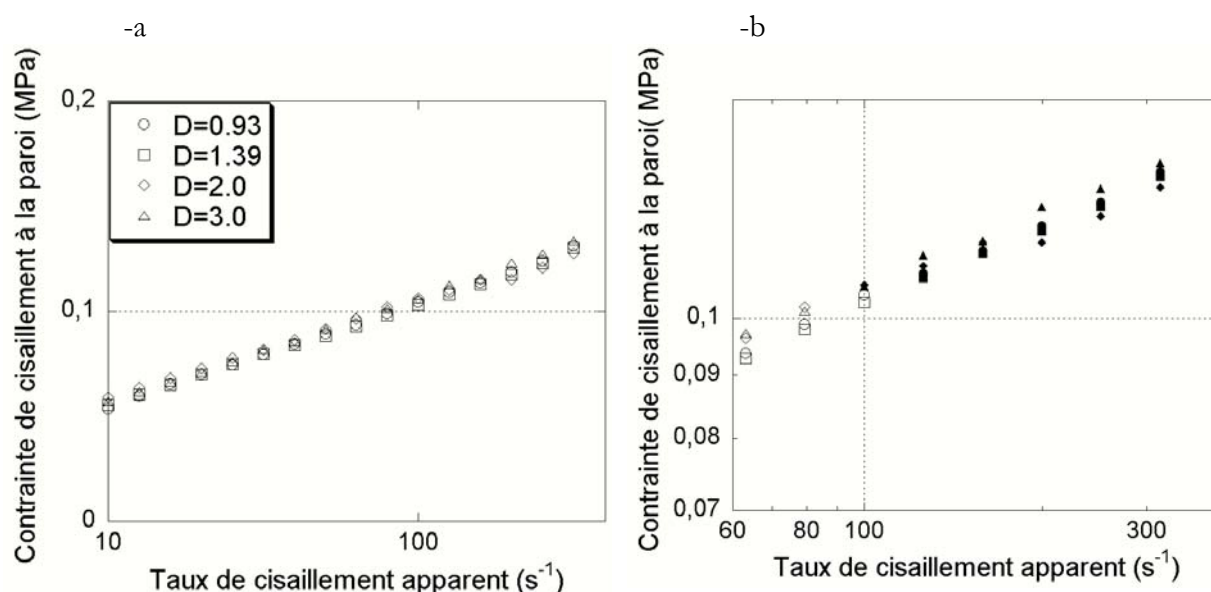


Fig. 3. 5 : Courbes d'écoulement en contrainte réelle pour différents diamètres, à 200°C ($\alpha = 45^\circ$). La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

Le déclenchement et le développement de l'instabilité hélicoïdale sont illustrés sur la figure 3. 5. b par l'utilisation de sigles « pleins ». A l'inverse, les sigles vides sont associés au régime stable. Les valeurs critiques de déclenchement du défaut seront présentées au paragraphe III. 6. 2.

En faisant varier la dimension principale de l'écoulement, c'est à dire le diamètre de filière dans le cas du rhéomètre capillaire, on peut mettre en évidence ou non la présence de glissement à la paroi. Dans notre cas, les courbes représentatives semblent se superposer pour chaque diamètre, ce qui exclue la présence de glissement. La même tendance est observée pour le PP (Annexe IV. 1). Dans le cas du PS 2, on note que les courbes se superposent assez mal : les conditions d'écoulement sont en effet très difficiles à maîtriser pour des taux de cisaillement aussi importants. On peut supposer que les incertitudes de mesure liées à l'auto-échauffement du matériau pourraient expliquer les divergences observées.

Il apparaît donc que la présence de glissement n'est pas nécessaire à l'apparition et surtout au développement du défaut volumique.

III. 3. Etude et quantification du défaut hélicoïdal

Le défaut obtenu avec le PS 2 n'a pas été caractérisé puisqu'il était difficile de recueillir correctement des extrudats dont la viscosité était beaucoup trop faible. En effet, nous verrons plus tard que, pour ce produit, les taux de cisaillement associés au développement de l'instabilité sont très élevés.

III. 3. 1. Méthode de quantification du défaut hélicoïdal

❖ Pas et diamètre hélicoïdaux

Le défaut hélicoïdal possède la particularité d'être très bien défini. Nous avons donc effectué des mesures dimensionnelles de pas et de diamètres hélicoïdaux (figure 3. 6). Lors de la transition

avec le défaut chaotique, l'extrudat conserve une organisation périodique (même si la géométrie de l'hélice n'est plus respectée). Dans les deux cas, le défaut demeure quantifiable.

Le phénomène de retrait en sortie de filière est largement présent lors du refroidissement de l'extrudat, mais on a supposé qu'il s'effectuait de manière homogène le long de l'échantillon, ne perturbant pas la comparaison quantitative de pas et diamètres hélicoïdaux d'une condition d'écoulement à l'autre.

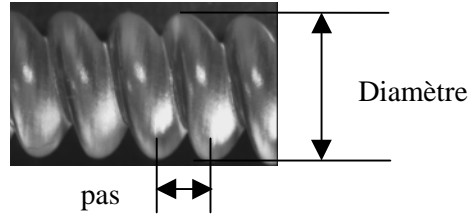


Fig. 3. 6 : Principe de quantification du défaut hélicoïdal.

La quantification du défaut a été effectuée à partir de photos réalisées à l'aide d'une loupe binoculaire et d'un microscope électronique. Le logiciel d'analyse d'images *Visilog* permet, à partir de fichiers de calibrage, la mesure directe des pas et des diamètres hélicoïdaux.

❖ Volume hélicoïdal et fréquence de l'instabilité

Il nous a semblé nécessaire, pour comparer la « sévérité » du défaut obtenu pour différentes conditions d'écoulement, de raisonner non seulement en terme de pas (ou diamètre) hélicoïdal mais aussi en terme de volume de spires extrudées ou en terme de fréquence.

Le calcul de volume d'hélicoïde extrudé est possible à partir des paramètres géométriques mesurés tels que le pas et le diamètre hélicoïdal. Cependant, par pesée, il est encore plus simple de déterminer le volume V d'une spire extrudée, à partir de la masse de l'extrudat M et de son nombre de périodicités hélicoïdales n :

$$V = \frac{M}{n\rho} \quad \text{Eq. 3. 1.}$$

où ρ est la masse volumique du polymère à la température d'extrusion.

De plus, puisque l'extrusion est effectuée à débit volumique Q imposé, on peut également calculer une fréquence propre à l'instabilité. Elle s'écrit :

$$f = \frac{Q}{V} = \frac{Qn\rho}{M} \quad \text{Eq. 3. 2.}$$

III. 3. 2. Influence de la longueur d'écoulement sur la morphologie du défaut

Les photos de la figure 3. 7 montrent l'influence de la longueur de la filière sur la forme des extrudats, pour plusieurs débits d'écoulement.

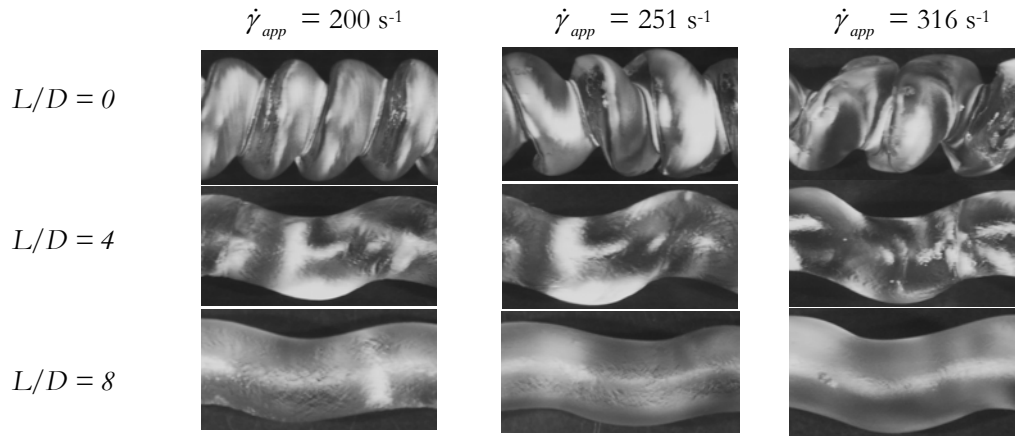


Fig. 3. 7 : Aspect d'extrudats à 200°C, pour différents rapports L/D et pour différents taux de cisaillement apparents ($D = 3.0$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

La sévérité des distorsions d'extrudats semble diminuer avec la longueur d'écoulement de la filière comme l'on observé de nombreux auteurs [4, 5, 6, 20].

On peut voir, sur la figure 3. 8, que le pas de l'hélice, ainsi que son diamètre, sont des fonctions linéaires croissantes du débit réduit :

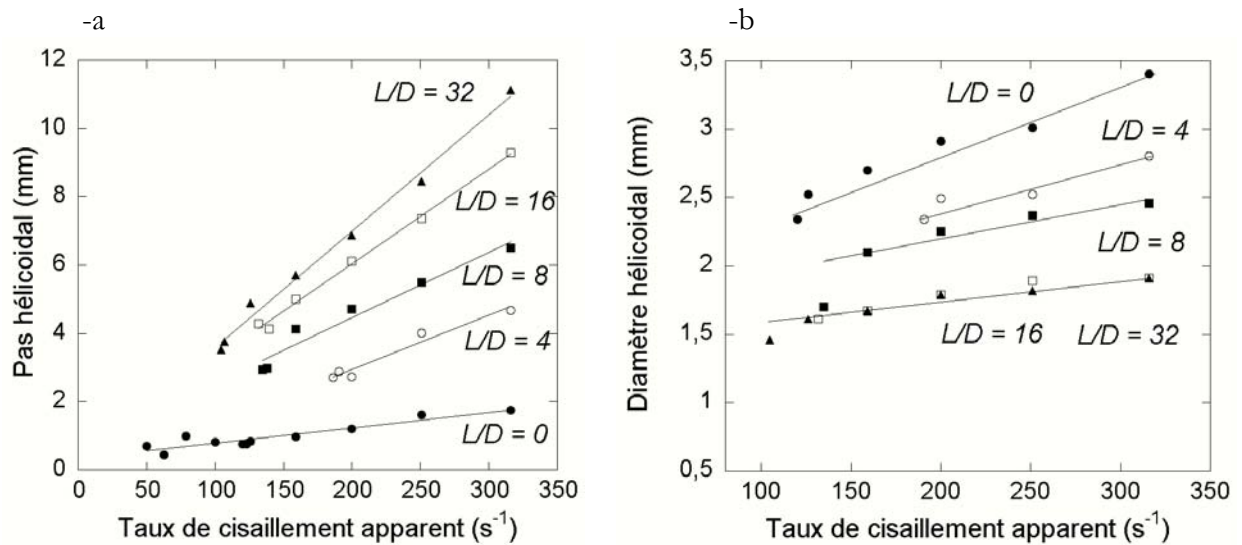


Fig. 3. 8 : Variation du pas de l'hélice (a) et de son diamètre (b) en fonction du taux de cisaillement apparent et pour différents rapports L/D , à 200 °C ($D = 0.93$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

Les courbes présentées sur la figure 3. 8. a, sont classées suivant les rapports L/D croissants : pour un débit réduit donné, le pas hélicoïdal augmente avec la longueur de la filière. A l'inverse, l'utilisation d'une filière longue présente des diamètres hélicoïdaux peu élevés. La variation du diamètre hélicoïdal est très faible entre les rapports L/D de 16 et 32. En effet, l'extrudat possède, avec les rapports L/D élevés, des distorsions très peu prononcées.

La morphologie d'extrudat associée au PP est illustrée en Annexe V. 1 et présente les mêmes caractéristiques.

Ainsi, l'apparente diminution de la sévérité du défaut quand L/D augmente est en réalité simplement due à l'augmentation du pas de l'hélice, rendant l'aspect de l'extrudat plus "rectiligne".

Nous nous sommes également intéressés à l'influence de la longueur d'écoulement sur le volume d'une spire et la fréquence de l'instabilité. En l'occurrence, nous avons distingué le cas du PS 1 et du PP puisqu'ils présentent des résultats très différents.

Pour le PS 1, les figures 3. 9 présentent l'évolution du volume hélicoïdal et de la fréquence en fonction du taux de cisaillement apparent :

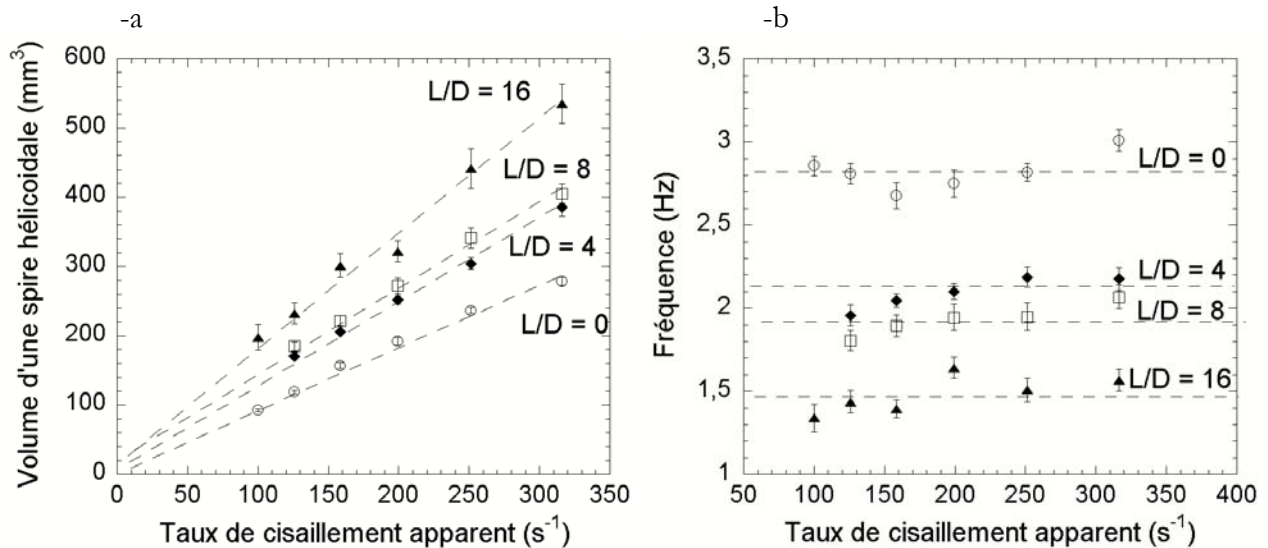


Fig. 3. 9 : Variation (a) du volume d'une spire hélicoïdale et (b) de la fréquence de l'instabilité en fonction du taux de cisaillement apparent, pour différents rapports L/D , à 200°C ($D = 3.0$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

Sur la figure 3. 9. a, on observe que, pour chaque rapport de longueur, les courbes passent approximativement par l'origine (un volume de spires extrudées nul suppose un débit imposé nul). De plus, les courbes obtenues montrent que, quel que soit le rapport L/D , le volume d'une spire augmente de façon linéaire avec le taux de cisaillement apparent. Pour le PP, la variation du volume hélicoïdal est représentée en Annexe V. 3 : les courbes possèdent une allure moins linéaire.

A même taux de cisaillement apparent, on note, d'après la figure 3. 9. a, que le volume hélicoïdal augmente avec le rapport L/D . Les courbes associées au PP, présentées en Annexe V. 3 se classent de même que pour le PS 1, suivant les L/D croissants.

Le volume est donc de la forme $V = \alpha Q$, où α est une fonction croissante de L/D . D'après l'équation 3. 2, on peut en conclure que la fréquence est donc constante, et inversement proportionnelle à L/D , ce que l'on constate sur la 3. 9. b.

Le développement du défaut hélicoïdal s'effectue donc suivant une fréquence définie, imposée par la géométrie de l'écoulement ($D, L/D$). Quand le débit réduit augmente, cette fréquence reste constante, avec une évolution croissante de l'ampleur des volumes hélicoïdaux.

Le polypropylène présente des fluctuations aléatoires de la mesure de fréquence en fonction du taux de cisaillement apparent, beaucoup plus marquées que pour le PS 1. Néanmoins, on peut considérer que la fréquence est globalement conservée le long de la courbe d'écoulement. Ceci est en accord avec l'observation de la morphologie d'extrudat qui nous est apparue nettement moins régulière que celle observée avec le PS 1. La figure 3. 10 illustre ces résultats.

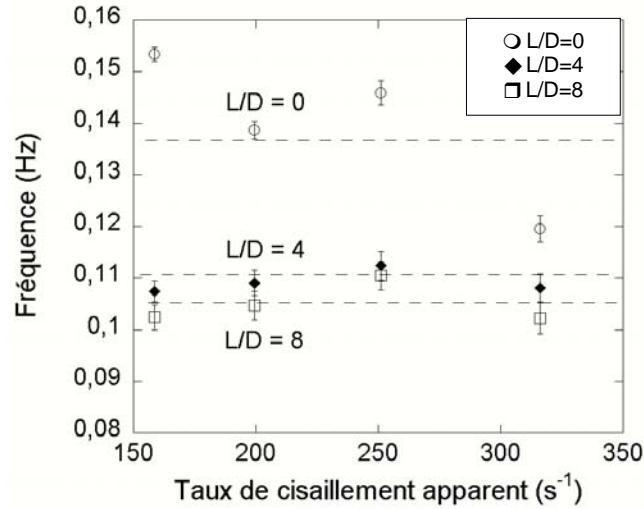


Fig. 3. 10 : Variation de la fréquence de l'instabilité en fonction du taux de cisaillement apparent, à 200°C, pour trois rapports L/D , dans le cas du PP ($D = 3.0$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

On peut noter, malgré les dispersions, que les fréquences ont une tendance à se classer suivant les rapports L/D décroissants, comme observé avec le PS 1. Cependant, les niveaux de fréquence sont très différents entre le PP et le PS 1 : ce point sera traité au paragraphe suivant.

Il a été observé dans la littérature que la fréquence du défaut en sortie et celle des pulsations des franges de biréfringence en amont de la filière sont identiques [23, 35]. Ainsi, il apparaît évident que la fréquence de l'instabilité à son initiation, à l'entrée du convergent, est différente d'une longueur d'écoulement à l'autre. La longueur de la filière aurait donc une influence, non pas sur l'amortissement de l'instabilité le long de l'écoulement et en sortie de filière, mais plutôt sur l'ampleur et la fréquence de l'instabilité à son apparition même.

III. 3. 3. Influence du diamètre de filière sur la morphologie du défaut

D'un diamètre à l'autre, on retrouve la même tendance du pas et du diamètre hélicoïdaux à augmenter de façon linéaire avec le débit d'écoulement :

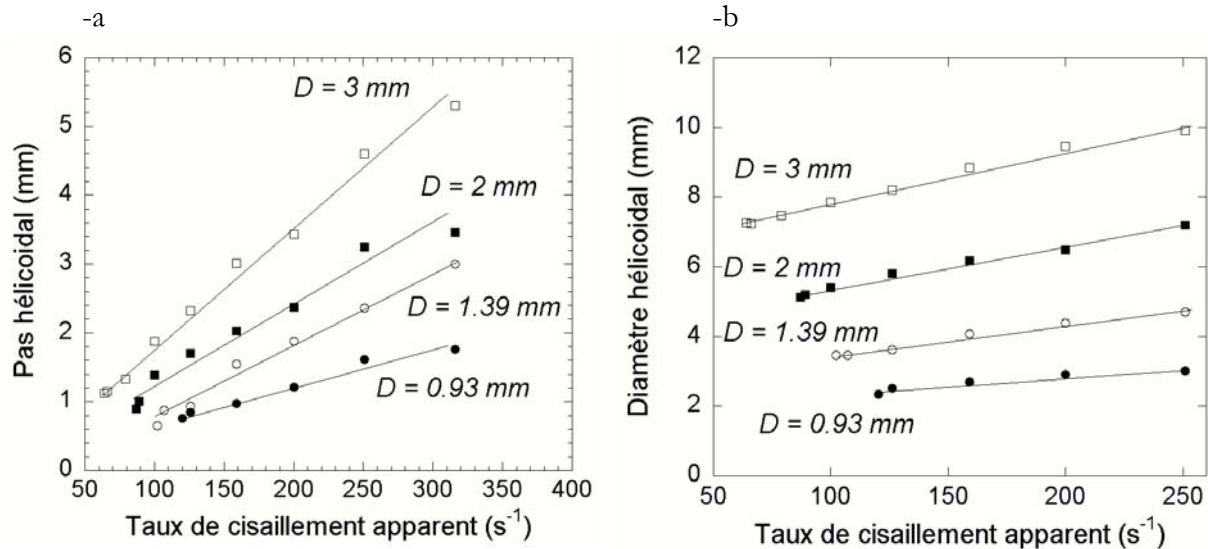


Fig. 3. 11 : Variation du pas (a) et du diamètre (b) de l'hélice, en fonction du taux de cisaillement apparent, à 200 °C, pour différents diamètres D ($L/D \approx 0$ et $\alpha = 45^\circ$).

A même débit réduit, on observe que le pas de l'hélice, ainsi que le diamètre hélicoïdal, augmentent avec le diamètre de filière. Ceci est vérifié avec le polypropylène et présenté en Annexe V. 2. Ainsi, si l'on augmente la dimension principale de l'écoulement en aval, à savoir le diamètre de filière, on peut imaginer que le phénomène sera amplifié, générant des distorsions plus larges. Cependant, comme nous l'étudions juste après, l'influence du diamètre sur les caractéristiques du défaut ne s'est pas avérée aussi simple, notamment vis-à-vis de la fréquence de l'instabilité.

Si l'on cumule toutes les géométries d'écoulement étudiées (diamètres D et rapports L/D), voici l'évolution de la fréquence du défaut en fonction du taux de cisaillement apparent :

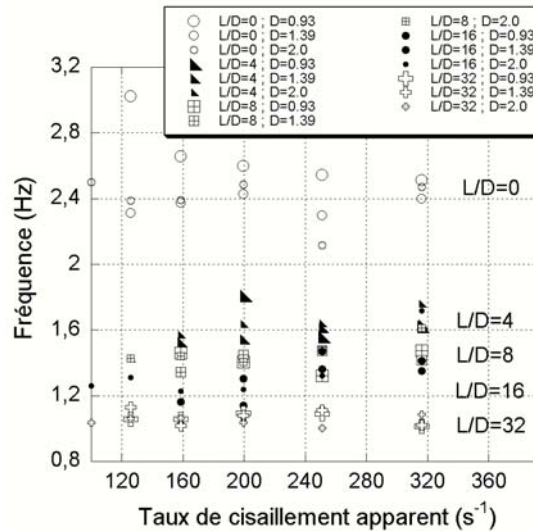


Fig. 3. 12 : Variation de la fréquence de l'instabilité en fonction du taux de cisaillement apparent, pour trois diamètres D différents et cinq rapports de longueur L/D , à 200°C ($\alpha = 45^\circ$).

Contrairement à la longueur de filière, il est difficile de dégager une tendance relative à l'influence du diamètre D sur la fréquence. Dans le cas du PS 1, il apparaît néanmoins que le rapport de contraction ne semble pas jouer un rôle déterminant quant à la fréquence du défaut, quel que soit le taux de cisaillement considéré.

Dans le cas du PP, la figure 3. 13 montre comment évolue la fréquence propre de l'instabilité, dans les mêmes conditions d'écoulement que celles adoptées pour le PS 1.

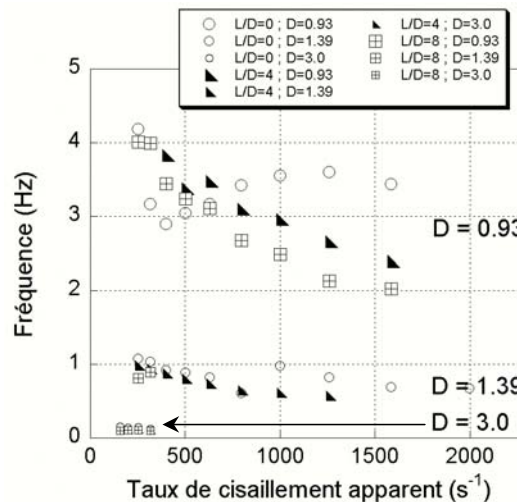


Fig. 3. 13 : Variation de la fréquence de l'instabilité en fonction du taux de cisaillement apparent, pour trois diamètres différents et trois rapports de longueur, à 200°C, dans le cas du PP ($\alpha = 45^\circ$).

La différence majeure entre les deux produits réside dans le fait que les fréquences du PP sont très fortement dépendantes du diamètre de filière utilisé. Plus le rapport de contraction semble sévère et plus les fréquences du défaut sont importantes. Elles varient de façon conséquente puisque l'on note des niveaux de fréquence de l'ordre de 3, 0.7 et 0.1 Hz pour des rapports de contraction respectifs de 17/1, 12/1 et 5/1.

Il demeure très difficile d'interpréter ces résultats, d'autant plus que le polystyrène ne présente pas du tout cette forte dépendance.

La figure 3. 14 compare les niveaux de fréquence estimés d'un polymère à l'autre, pour une température de référence de 200 °C.

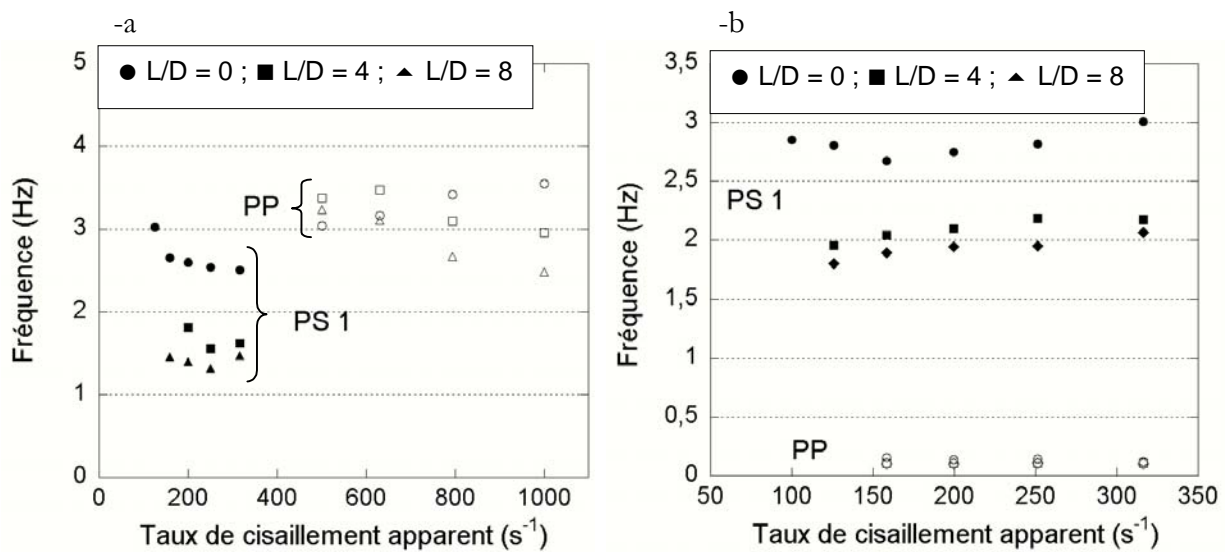


Fig. 3. 14 : Variation de la fréquence de l'instabilité en fonction du taux de cisaillement apparent, pour un diamètre D de 0.93 (a) et 3.0 mm (b) et trois rapports de longueur, à 200°C, dans le cas du PS 1 et du PP ($\alpha = 45^\circ$).

Avec le polypropylène, la forte dépendance de la fréquence avec le diamètre utilisé rend délicate la comparaison des niveaux de fréquence, d'un polymère à l'autre. Rappelons, en effet, que la fréquence estimée avec le PS 1 ne dépend pas du rapport de contraction. Ainsi, dans le cas du diamètre D de 0.93 mm, les niveaux de fréquence sont comparables entre les deux matériaux (figure 3. 14. a). A l'inverse, avec le diamètre D de 3.0 mm, le PS 1 présente des fréquences nettement plus élevées (figure 3. 14. b). Il existe un facteur de 25 entre les deux estimations de fréquence. Ce curieux résultat semble difficile d'interprétation puisque, à notre connaissance, il n'a jamais été montré que le rapport de contraction ait une influence sur la fréquence propre de l'instabilité hélicoïdale.

III. 4. Influence de la température

III. 4. 1. Déclenchement du défaut hélicoïdal

Nous avons effectué des essais à différentes températures (180, 200 et 220 °C), pour le PS 1. On constate, figure 3. 15, que le taux de cisaillement critique lié à l'apparition du défaut hélicoïdal est décalé vers des valeurs plus faibles à des températures plus faibles.

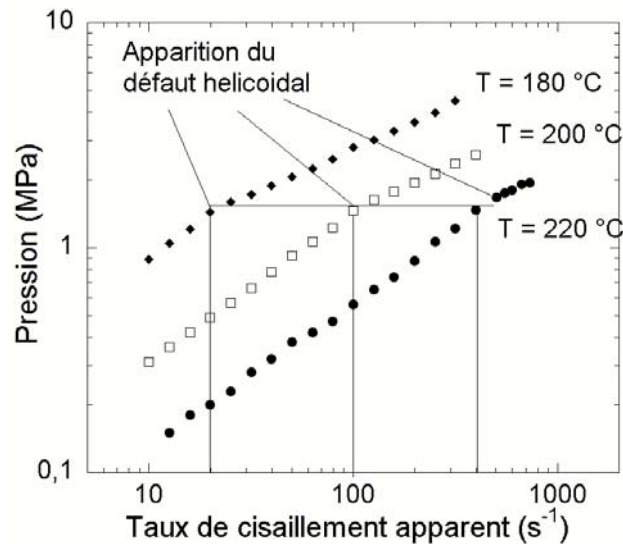


Fig. 3. 15 : Courbes d'écoulement apparentes à 180°C, 200°C et 220 °C ($D = 1.39$ mm, $L/D \approx 0$ et $\alpha = 45^\circ$).

Chaque courbe présente une rupture de pente à l'apparition du défaut (rappelons que la filière utilisée est une filière orifice). En outre, les pressions relatives au déclenchement de l'instabilité sont très proches : elles s'élèvent à 1.44, 1.46 et 1.67 MPa pour les températures de 180, 200 et 220 °C. Ceci semble confirmer le fait que l'initiation du défaut a lieu pour un certain niveau de contrainte. Les courbes apparentes se superposent parfaitement selon le principe de superposition temps/température :

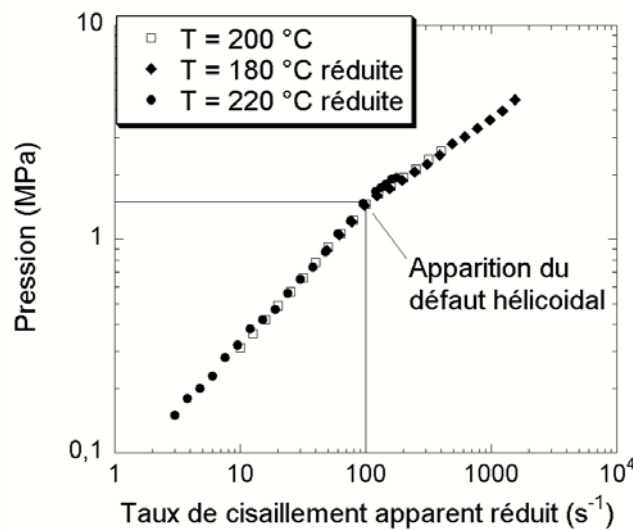


Fig. 3. 16 : Application du principe de superposition temps/température, pour une température de référence de 200 °C.

Les courbes d'écoulement (et leur rupture de pente respective) peuvent donc se déduire les unes des autres à partir d'une seule courbe à une température donnée et du facteur de glissement a_T .

Dans notre cas, les valeurs du facteur de glissement à une température de référence de 200 °C et provenant de la rhéométrie dynamique sont respectivement de 0.22 et 5.12 pour les températures de 220 et 180 °C. Nous avons utilisé les valeurs de 0.24 et 4.9 dans le cas présent, de façon à rendre la superposition des courbes plus précise. Ces mêmes valeurs nous serviront également au paragraphe suivant.

Les valeurs des facteurs de glissement présentés supposent des températures de 219 et 180.5 °C respectivement au lieu de 220 et 180 °C. Cet écart est très raisonnable compte tenu des conditions expérimentales. L'incertitude sur la température d'écoulement a été estimée à 4 °C, au regard des coefficients de glissement estimés sur toutes nos courbes d'écoulement.

L'annexe VI présente les résultats obtenus avec le PP et le PS 2 : ces résultats confortent les conclusions énoncées précédemment.

Le déclenchement de l'instabilité est donc thermodépendant et prévisible grâce au principe de superposition temps/température.

III. 4. 2. Quantification du défaut hélicoïdal

Nous avons voulu vérifier si les quantifications réalisées à partir de la morphologie d'extrudat étaient elles aussi superposables, d'une température à l'autre :

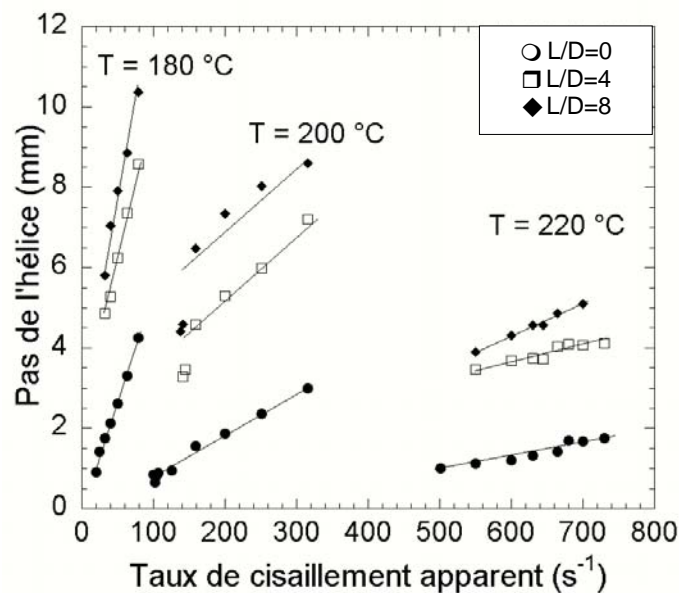


Fig. 3. 17 : Variation du pas hélicoïdal en fonction du taux de cisaillement apparent, pour des températures de 180, 200 et 220 °C, pour différents rapports L/D ($D = 1.39$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

On observe que les courbes de quantification (pas, diamètre de l'hélice) obtenues à différentes températures ne possèdent pas les mêmes pentes et ne semblent en aucun cas superposables. Il ne semble donc pas possible de prédire directement la morphologie de l'extrudat affecté du défaut à partir des données d'une température (le cas du diamètre hélicoïdal présente les mêmes conclusions).

Par ailleurs, une mesure de fréquence a pu être menée, comme précédemment, pour différentes températures. Elle est représentée à la figure 3. 18.

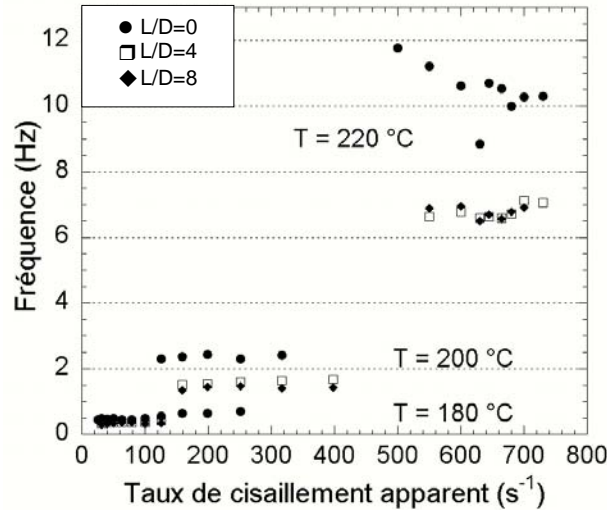


Fig. 3. 18 : Variation de la fréquence de l'instabilité avec le taux de cisaillement apparent, pour des températures de 180, 200 et 220 °C et pour différents rapports L/D ($D = 1.39$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

Les fréquences obtenues sont de l'ordre de 0.5, 1.5 et 7 Hz pour les températures de 180, 200 et 220 °C, respectivement. La fréquence de l'instabilité augmente donc de façon conséquente avec la température d'écoulement.

Si l'on applique le principe de superposition temps/température (avec les mêmes facteurs de glissement a_T que précédemment) à la fois aux fréquences et aux taux de cisaillement apparents, on obtient les courbes suivantes:

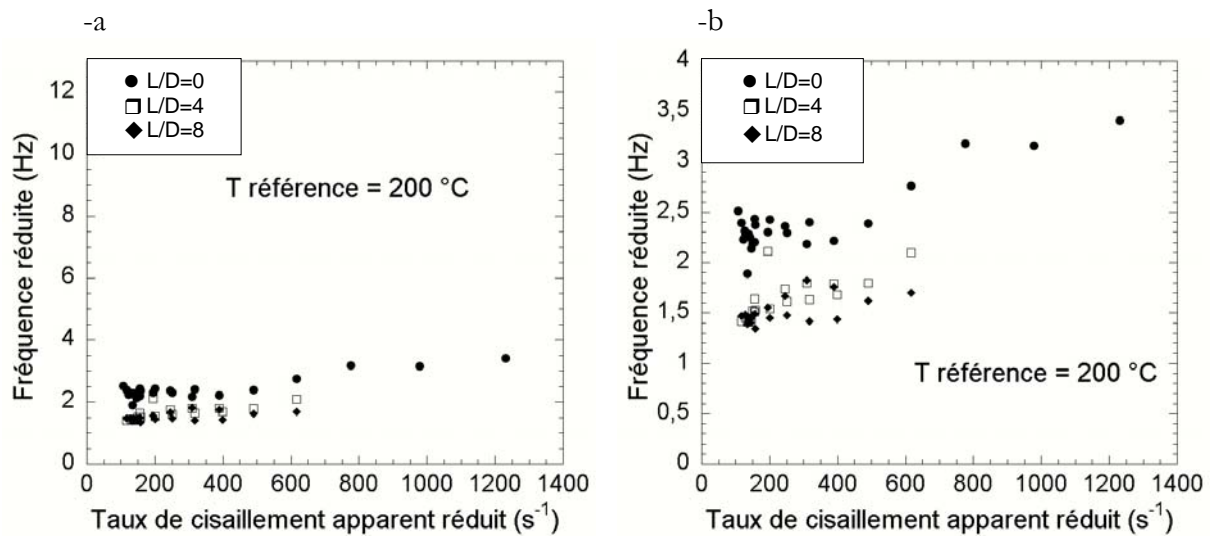


Fig. 3. 19 : Application du principe de superposition temps/température sur les fréquences (température de référence 200 °C). On utilise la même échelle que la figure 3. 18 (a) et une échelle zoomée (b).

On note que le principe de superposition temps/température est une nouvelle fois applicable ; les courbes se superposent suivant un même niveau de fréquence. On peut ainsi construire pour chaque rapport de longueur L/D une courbe maîtresse (figure 3. 19. b et Annexe VI. 3 pour le PP).

Le développement de l'instabilité en terme d'amplitude est caractérisé par l'évolution du volume d'une périodicité extrudée avec le débit réduit. La figure 3. 20 en présente une illustration.

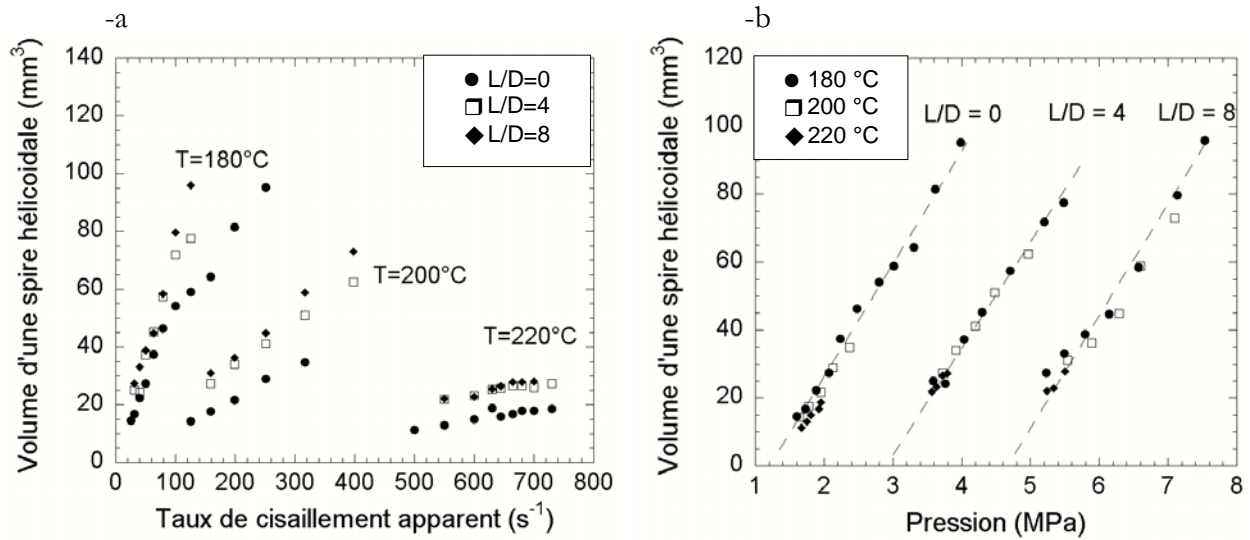


Fig. 3. 20 : Variation du volume d'une périodicité en fonction du taux de cisaillement apparent (a) et de la pression mesurée (b), pour trois températures et trois rapports de longueur ($D = 1.39$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

On observe que les pentes caractéristiques de la variation de volume hélicoïdal extrudé en fonction de la pression mesurée sont sensiblement les mêmes pour les trois températures considérées (figure 3. 20. b). Cette observation n'est en aucun cas valable dans le cas de la variation en fonction du taux de cisaillement apparent (figure 3. 20. a). A partir des corrections de Bagley, nous avons ensuite tracé l'évolution du volume d'une spire hélicoïdale en fonction de la pression régnant dans le convergent :

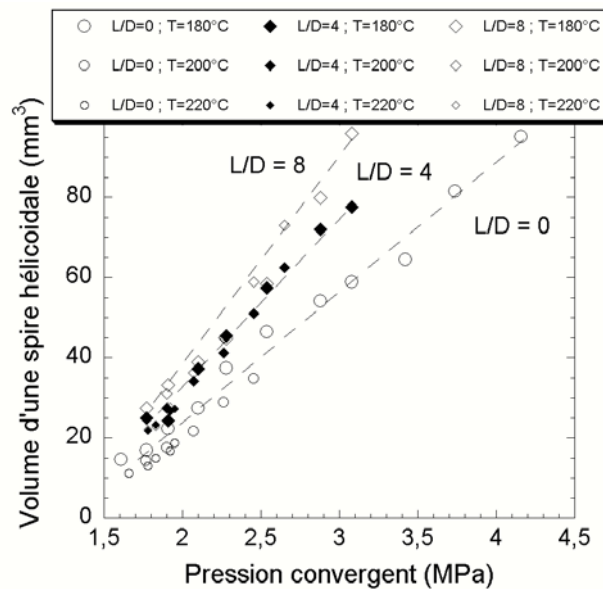


Fig. 3. 21 : Variation du volume d'une périodicité en fonction de la pression mesurée dans le convergent, pour trois températures et trois rapports de longueur ($D = 1.39$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

Sur ce graphique, on observe le classement des volumes hélicoïdaux suivant le rapport L/D croissant que nous avons observé au paragraphe précédent. Pour chaque longueur d'écoulement, il existe une courbe unique : d'une température à l'autre, le défaut hélicoïdal se développe, en terme d'amplitude, de façon semblable (« même vitesse ») avec la pression qui règne dans le convergent.

En définitive, le défaut hélicoïdal est très thermodépendant. Son déclenchement, ainsi que sa fréquence propre, obéissent au principe de superposition temps/température. Les propriétés viscoélastiques du polymère étudié sont donc clairement impliquées dans l'expression même du comportement instable du polymère en écoulement.

III. 5. Influence de l'angle d'entrée de la filière

III. 5. 1. Déclenchement du défaut hélicoïdal

Nous avons utilisé deux filières de demi-angle d'entrée 45 et 90°, pour une même température de 200°C :

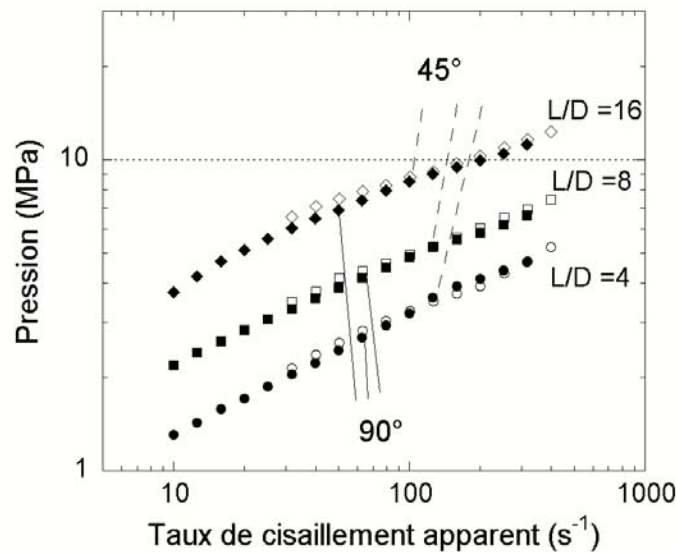


Fig. 3. 22 : Courbes d'écoulement apparentes obtenues avec des convergents de demi-angle 45 et 90°, pour trois rapports L/D , à 200 °C ($D = 0.93$ mm).

Les sigles pleins et vides correspondent respectivement aux convergents de demi-angle 45 et 90°. On remarque que, pour chaque valeur du rapport de longueur L/D , les courbes se superposent assez bien. Ceci prouve que les effets d'entrée sont peu marqués sur la pression.

Les taux de cisaillement critiques associés à l'apparition du défaut hélicoïdal sont repérés sur les courbes par les traits (trait « pointillé » et trait « fort », respectivement, pour les configurations d'entrée de demi-angle 45 et 90°). Dans les mêmes conditions d'écoulement, on note que le défaut est repoussé à des taux de cisaillement supérieurs si l'on réduit l'angle d'entrée. Les taux de cisaillement critiques sont de l'ordre de 55 s⁻¹ avec un demi-angle de 90° contre 110 s⁻¹ pour un demi-angle de 45°.

La même expérience a été menée avec le polypropylène et fait l'objet de la figure 3. 23 (on repère toujours à l'aide de traits l'apparition du défaut hélicoïdal).

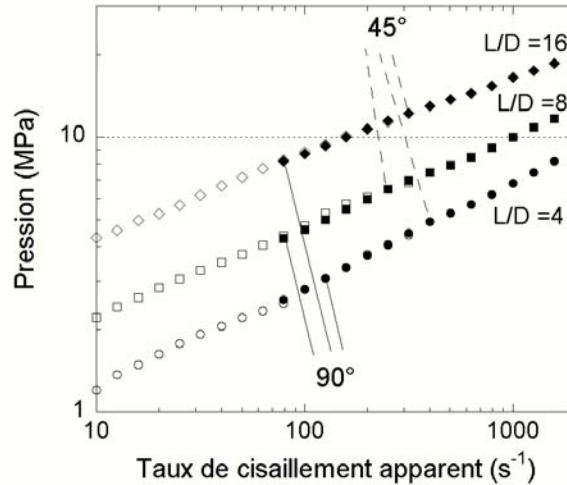


Fig. 3. 23 : Courbes d'écoulement apparentes obtenues avec des convergents de demi-angle 45 et 90°, pour trois rapports L/D , à 200 °C, dans le cas du PP ($D = 0.93$ mm).

Comme dans le cas du PS 1, on observe que les effets d'entrée sont peu marqués sur les courbes d'écoulement du polypropylène. De même, les taux de cisaillement critiques sont plus élevés si l'on utilise un demi-angle d'entrée faible. En l'occurrence, les écarts observés d'une géométrie à l'autre en terme de débit critique sont conséquents. Alors que les taux de cisaillement apparents liés à l'apparition du défaut prennent des valeurs autour de 100 s^{-1} avec une contraction brusque, la géométrie possédant une entrée conique de 45° nous permet d'atteindre des taux de cisaillement plus de trois fois supérieurs.

On remarque que, quel que soit le polymère considéré, les pressions critiques augmentent elles aussi avec l'utilisation d'un angle faible. Ces observations sont en accord avec la majorité des résultats issus de la littérature [20, 42].

Le PS 2 présente un comportement très singulier notamment avec l'usage d'une filière à contraction brusque. Ce point particulier sera développé au chapitre V.

III. 5. 2. Quantification du défaut hélicoïdal

Nous avons remarqué que la fréquence du défaut hélicoïdal dépendait de l'angle de convergent utilisé, comme le montre la figure 3. 24.

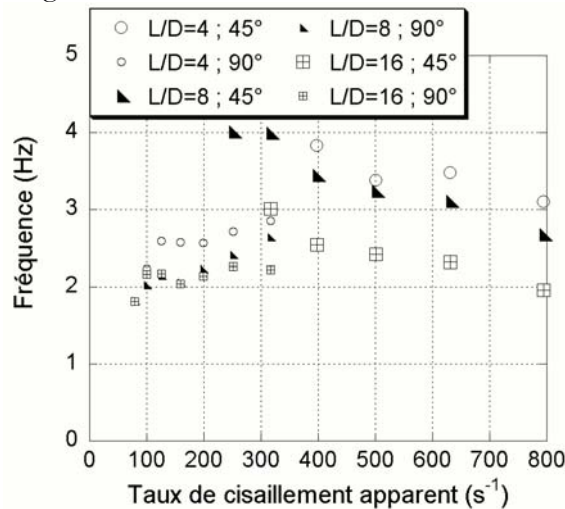


Fig. 3. 24 : Variation de la fréquence de l'instabilité avec le taux de cisaillement apparent, pour des demi-angles de convergent de 45 et 90°, pour trois rapports L/D , à 200 °C, dans le cas du PP ($D = 0.93$ mm).

L'utilisation d'angle d'entrée faible conduit à des fréquences plus élevées : cette constatation est valable pour les trois rapports de longueur étudiés. La figure 3. 25 montre comment varie le volume d'une spire extrudée en fonction de la géométrie d'angle.

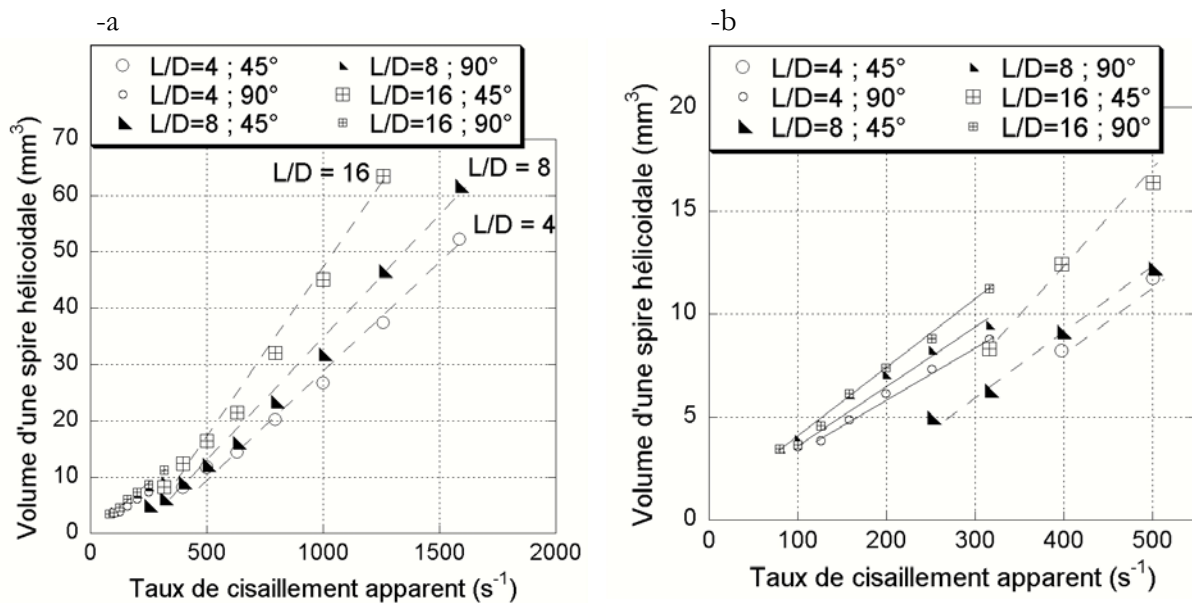


Fig. 3. 25 : Variation du volume d'une spire hélicoïdale avec le taux de cisaillement apparent, pour des demi-angles de convergent de 45 et 90°, pour trois rapports L/D , à 200 °C, dans le cas du PP ($D = 0.93$ mm). La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

Il est difficile d'utiliser une gamme de taux de cisaillement apparent commune d'une configuration géométrique à l'autre. Elle apparaît cependant pour quelques point de la figure 3. 25. b.

Pour un même taux de cisaillement apparent, le volume d'une périodicité est plus important avec un demi-angle d'entrée de 90°, plutôt qu'avec une entrée conique de 45°.

On imagine en effet assez facilement qu'une déstabilisation de l'écoulement amont est physiquement limitée par les bords d'un convergent de faible angle d'entrée. L'amplitude des oscillations est moindre par rapport à une configuration de type « contraction brusque ». Par voie de conséquence, la fréquence tend à augmenter. Ce sont des résultats qui avaient été prévus dans la littérature des années 1970 [4, 20, 22].

III. 6. Critères de déclenchement de l'instabilité hélicoïdale

Il existe dans la littérature de nombreuses définitions de paramètres critiques, censés définir les conditions de déclenchement de l'instabilité. De manière générale, ces critères s'appliquent aussi bien à l'instabilité hélicoïdale qu'au défaut chaotique, ce qui rend souvent les conclusions assez confuses. Dans notre cas, nous avons porté notre attention sur l'initiation de l'instabilité hélicoïdale. La transition entre le défaut hélicoïdal et chaotique est délicate à définir puisque ce dernier est l'expression d'une dégénérescence très progressive du premier.

Comme nous l'avons observé sur les figures 3. 1 et 3. 4, il apparaît que, suivant la géométrie du capillaire (diamètre et longueur), l'apparition du défaut se fait à des valeurs différentes du taux de cisaillement apparent. De même, nous avons observé que le débit réduit critique dépend

fortement de la température ainsi que de la géométrie de convergent. Par conséquent, nous n'utiliserons pas cette grandeur pour caractériser le déclenchement du défaut hélicoïdal.

III. 6. 1. Pression critique

La pression mesurée en amont de la contraction semble plus adaptée comme critère d'apparition du défaut. En effet, pour différents diamètres D et pour un rapport L/D donné, les niveaux de pression relevés sont, aux incertitudes de mesure près, indépendants du diamètre de filière considéré :

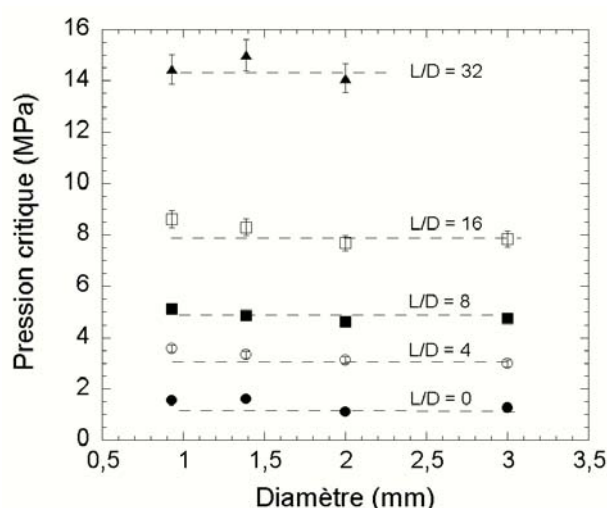


Fig. 3. 26 : Variation de la pression critique en fonction du diamètre, à 200 °C ($\alpha = 45^\circ$).

L'incertitude sur la mesure de pression comprend entre autre l'erreur systématique du capteur et l'usinage des filières. Elle est estimée à 4 % [56].

Pour chaque longueur d'écoulement, il semble exister une pression critique indépendante du diamètre de filière considéré. La figure 3. 27 présente la variation des pressions critiques en fonction du rapport de longueur L/D .

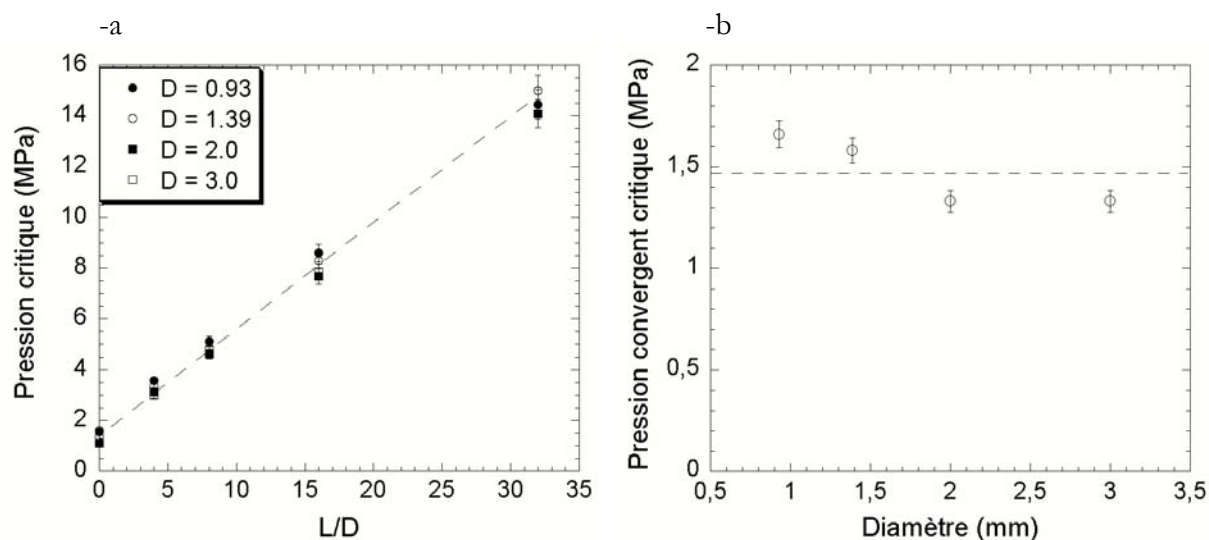


Fig. 3. 27 : (a) : Variation de la pression totale critique en fonction de L/D . (b) : Variation de la pression critique mesurée dans le convergent en fonction du diamètre, à 200 °C ($\alpha = 45^\circ$).

Précisons que la pression totale est la pression mesurée en amont de la filière. On remarque sur la figure 3. 27. a que la pression totale critique est une fonction linéaire croissante de L/D . Pour chaque diamètre, on a ainsi pu évaluer l'équation de ces régressions linéaires et estimer la valeur de l'ordonnée à l'origine. Il s'agit de la pression associée à une filière de longueur nulle, soit la pression régnant dans le convergent de la filière. La figure 3. 27. b représente la variation de la pression critique estimée dans le convergent. Elle varie très peu d'un diamètre à l'autre puisque les valeurs s'échelonnent entre 1.33 et 1.66 MPa.

La pression d'entrée apparaît donc comme un critère particulièrement pertinent, d'autant plus qu'elle demeure par ailleurs indépendante de la température. Malgré cela, nous avons observé que d'un angle de convergent à l'autre, les courbes d'écoulement se superposent très bien. Les déclenchements du défaut associés sont par contre très différents et correspondent à des valeurs de pression dans le convergent très différentes. Même s'il s'agit d'un paramètre facile à estimer, la pression d'entrée semble être un critère trop « pauvre » pour pouvoir expliquer les différences observées entre un convergent de type « fond plat » et conique.

En conclusion, cette étude conforte très nettement l'idée selon laquelle la déstabilisation de l'écoulement amont est liée à un paramètre de contrainte plutôt qu'à un débit d'écoulement critique.

III. 6. 2. Contrainte de cisaillement critique

La contrainte de cisaillement critique a été estimée pour les géométries présentées au paragraphe précédent, pour les filières possédant une longueur de capillaire non nulle :

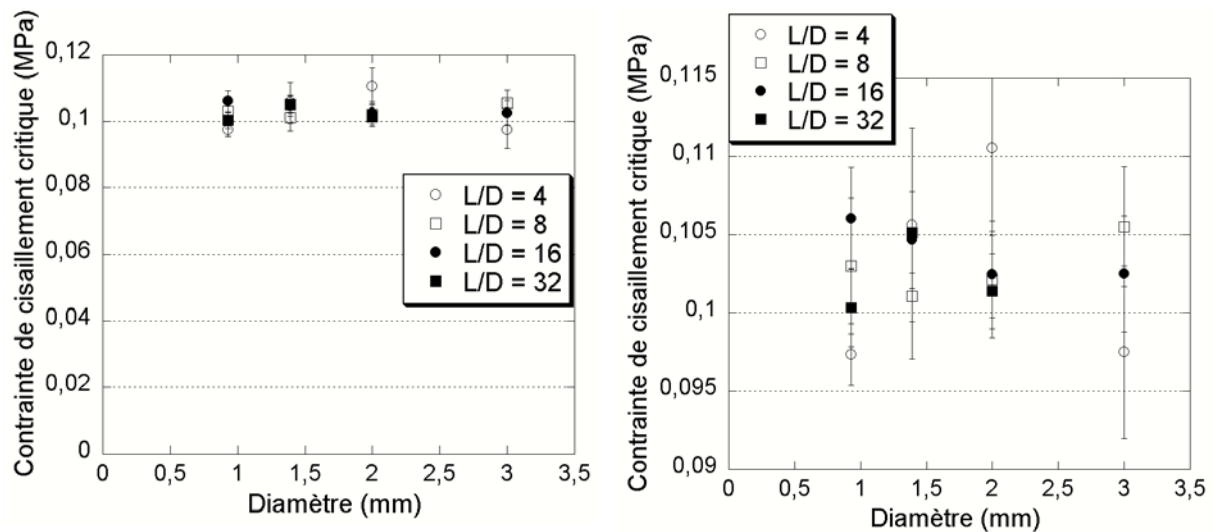


Fig. 3. 28 : Variation de la contrainte de cisaillement critique en fonction du diamètre, pour quatre rapports de longueurs, à 200°C ($\alpha = 45^\circ$). La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

Les contraintes critiques calculées varient entre des valeurs de 0.097 et 0.11 MPa et ceci pour toutes les géométries de filière confondues (diamètres et longueurs).

La contrainte de cisaillement reste une grandeur beaucoup plus pertinente et caractéristique du développement de l'instabilité que le taux de cisaillement apparent. Malgré tout, la contrainte de cisaillement ne peut être considérée comme critère de déclenchement dans le cas des deux angles de convergents étudiés. Les contraintes de cisaillement associées aux débits d'écoulement critiques sont en effet très différentes, au même titre que les pressions mesurées.

Même s'il existe des relations de proportionnalité entre les différentes composantes du tenseur des contraintes, la contrainte de cisaillement est une grandeur calculée dans la partie aval de l'écoulement, caractéristique d'un état de contrainte à la paroi du capillaire. Elle ne peut que très imparfaitement traduire les sollicitations élongationnelles subies par le fluide en amont de la contraction.

III. 6. 3. Contrainte élongationnelle critique

Cogswell [50] a proposé un mode de traitement des données concernant les pressions d'entrée pour en déduire une estimation de la viscosité et de la contrainte représentatives des effets élongationnels d'un écoulement dans une contraction. Il déclare qu'il existe, dans un convergent, une contribution relative du caractère en élongation et en cisaillement de l'écoulement, régie par le débit volumique imposé, la géométrie d'entrée et par les propriétés intrinsèques du fluide. L'écoulement est, en l'occurrence, soumis à un taux de déformation en élongation très significatif par rapport au taux de cisaillement.

La pression dans le convergent peut, d'après Cogswell, se décomposer en deux contributions respectivement liées au cisaillement et à l'élongation.

La pression liée au cisaillement s'écrit :

$$P_{cis} = \frac{2K}{3m \tan \alpha} \left(\frac{1+3m}{4m} \right)^m \dot{\gamma}_{app}^m \left(1 - \left(\frac{R_1}{R_0} \right)^{3m} \right) \quad \text{Eq. 3. 3.}$$

où K et m sont les paramètres de la loi puissance, α le demi-angle du convergent, R_1 et R_0 les rayons du capillaire et du fourreau.

La pression liée à l'élongation dans le convergent est la différence entre la pression totale mesurée dans le convergent (issue des corrections de Bagley) et la pression liée au cisaillement. La figure 3. 29 montre qu'il existe, dans la pression totale du convergent, une contribution notable de la pression due au caractère élongationnel de l'écoulement.

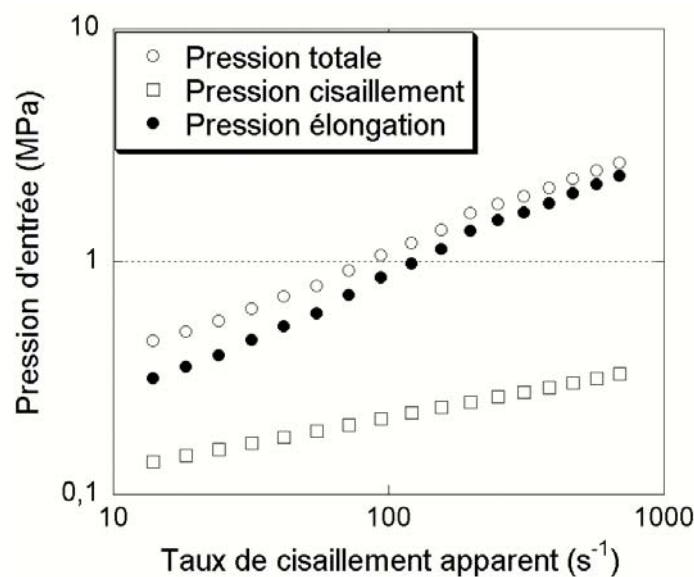


Fig. 3. 29 : Estimation des pressions dans le convergent de filière, à 200 °C ($D = 1.39$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

Rappelons les expressions de la contrainte et du taux de déformation élongationnels présentées au chapitre I :

$$\sigma_{el} = \frac{3}{8}(m+1)\Delta P_e \quad \text{Eq. 1. 4.}$$

$$\dot{\epsilon}_{el} = \frac{4}{3} \frac{\dot{\gamma}_{app}}{(m+1)} \frac{\tau_w}{\Delta P_e} \quad \text{Eq. 1. 5.}$$

On note que le calcul de la contrainte élongationnelle fait intervenir une pression d'entrée ΔP_e . L'étude précédente, relative à l'estimation de pressions critiques dans le convergent, constitue une approche préliminaire intéressante, s'inscrivant tout à fait dans la démarche du calcul de contrainte élongationnelle critique.

A l'apparition du défaut hélicoïdal, on a pu calculer les contraintes élongationnelles critiques pour différentes géométries et températures d'écoulement :

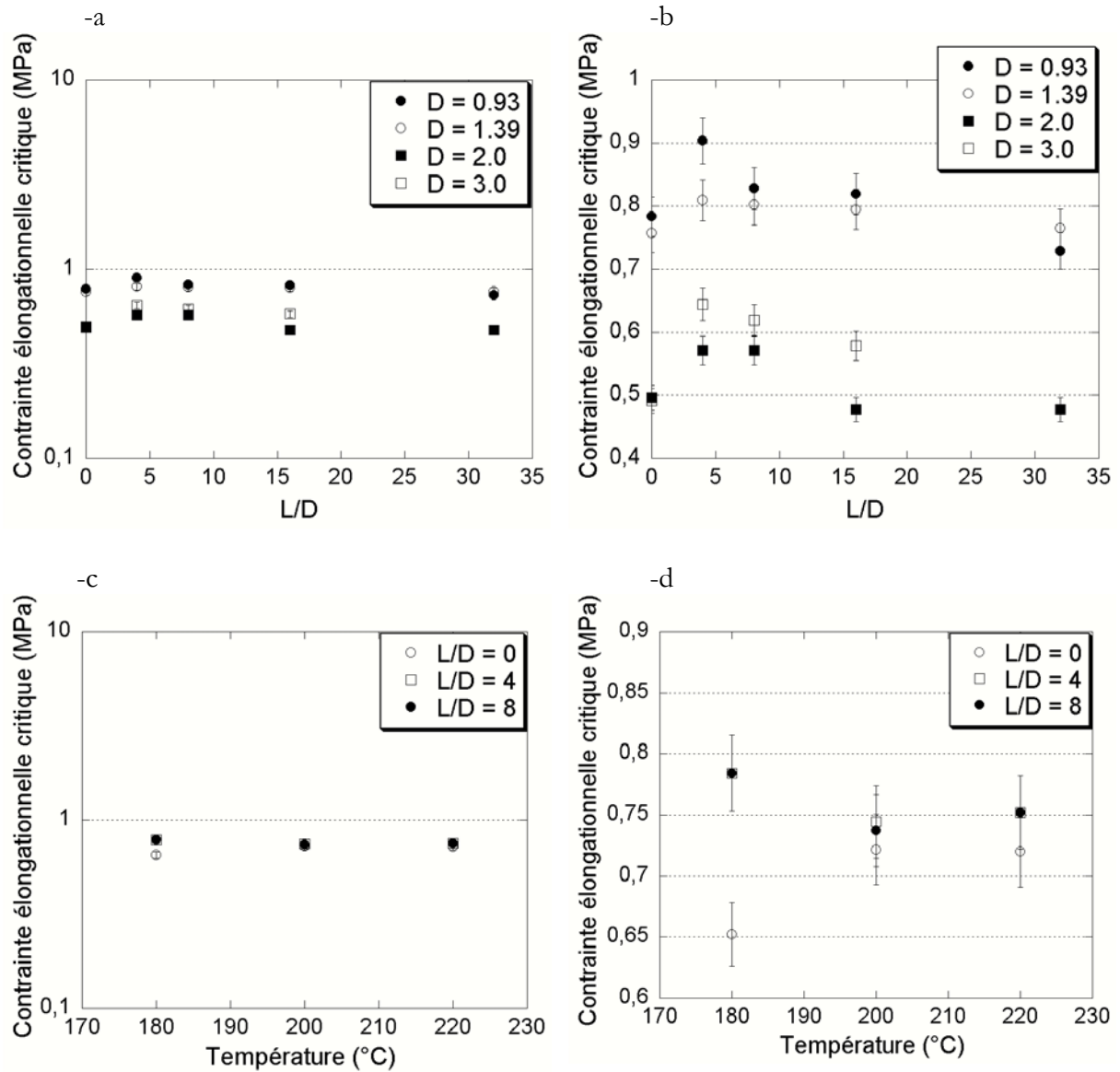


Fig. 3. 30 : Variation de la contrainte élongationnelle critique pour différents diamètres et longueurs de filière, à 200 °C ($\alpha = 45^\circ$) (a et b) et pour différentes températures ($D = 1.39$ mm et $\alpha = 45^\circ$) (c et d). Les figures (b) et (d) sont à une échelle zoomée par rapport aux figures (a) et (c).

La contrainte élongationnelle critique varie de 0.5 à 0.9 MPa suivant la géométrie utilisée et est peu sensible à la température imposée. La représentation graphique de cette grandeur en fonction des géométries vise simplement à donner une tendance quant à la pertinence de la contrainte élongationnelle puisque rappelons qu'il ne s'agit que d'une composante élongationnelle estimée. Elle pourrait constituer un critère adapté, caractéristique de l'amorçage du défaut. Ce paramètre a déjà été proposé par Kim et Dealy [51], qui donnent une valeur de 2 MPa pour le défaut chaotique de polyéthylènes linéaires. Malgré tout, Cogswell précise que seules les entrées de forme conique sont adaptées à ce calcul : le cas des filières de type « fond plat » n'a donc pas pu être étudié par cette méthode.

A ce stade de l'étude, il semble que la simple mesure de pression analysée par la méthode de Cogswell soit insuffisante pour pouvoir comprendre les divergences obtenues entre deux formes de convergent très différentes.

III. 6. 4. Taux de déformation élongationnel critique

Un autre critère relatif au caractère élongationnel de l'écoulement dans le convergent peut être obtenu à partir de l'analyse de Cogswell [50]. Il s'agit du taux de déformation élongationnel (Eq. 1. 5).

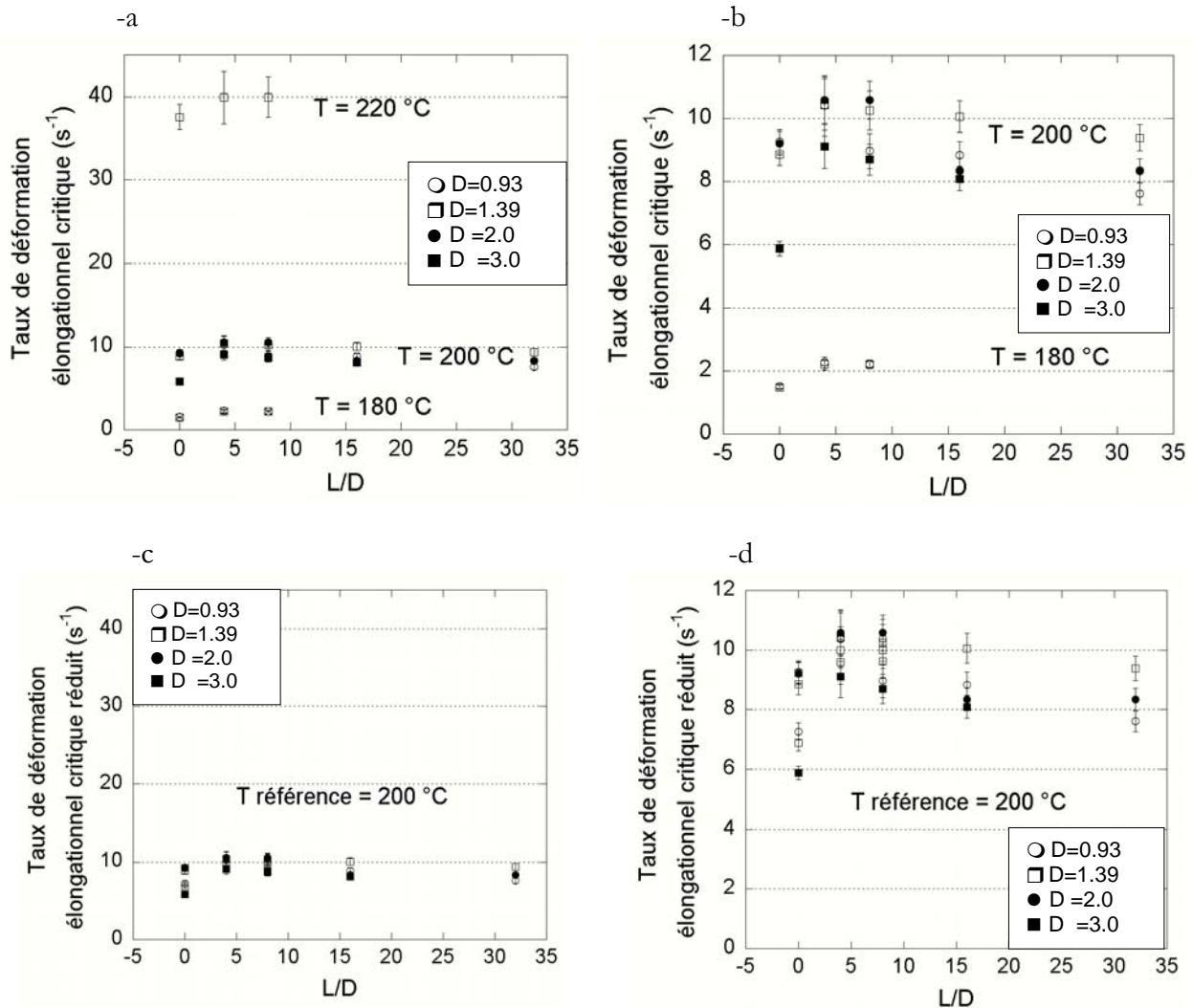


Fig. 3. 31 : Variation du taux de déformation élongationnel critique (a et b) pour des températures de 180, 200 et 220 °C, avec différents diamètres et différentes longueurs de filière, et après application du principe de superposition temps/température (température de référence de 200 °C) (c et d). Les figures (b) et (d) sont à une échelle zoomée par rapport aux figures (a) et (c).

Si le taux de déformation critique est très dépendant de la température [51], on note cependant qu'il ne dépend pas de la géométrie d'écoulement (diamètre et longueur de filière).

Si l'on applique le principe de superposition temps/température, les courbes se superposent une fois de plus, suivant un même niveau de taux de déformation élongationnel, voisin de 9 s^{-1} à 200°C .

L'élongation dans l'écoulement semble donc être à l'origine de la déstabilisation de celui-ci. Nos résultats confirment que la pression d'entrée ou encore le taux de déformation élongationnel et la contrainte élongationnelle, même s'ils sont estimés ici de manière approchée, demeurent des critères pertinents.

III. 6. 5. Nombre de Weissenberg critique

De même que pour les paramètres estimés par la méthode de Cogswell, nous avons essayé de quantifier le nombre de Weissenberg relatif aux conditions de déclenchement du défaut hélicoïdal, pour toutes les géométries et températures étudiées.

Les figures suivantes présentent l'évolution du nombre de Weissenberg We mesuré en rhéologie. La mesure a été réalisée pour des taux de cisaillement variant de 0.1 à 0.8 s^{-1} . Nous avons essayé d'extrapoler les valeurs de We pour des taux de cisaillement bien supérieurs puisque l'instabilité est initiée pour des taux de cisaillement corrigés s'échelonnant entre 40 et 330 s^{-1} , suivant la géométrie ou la température considérée.

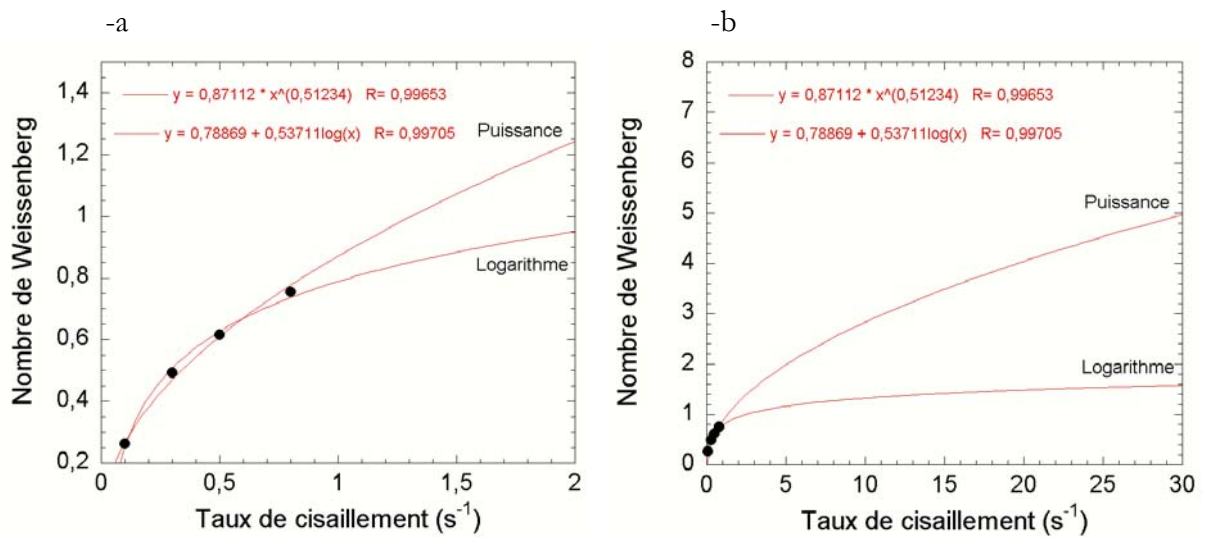


Fig. 3. 32 : Variation du nombre de Weissenberg en fonction du taux de cisaillement à 200°C et courbes de tendance logarithmique et puissance associées, à deux échelles différentes (a et b).

Nous avons ajusté la courbe expérimentale en utilisant une régression logarithmique et une régression de type « puissance », qui donnent sensiblement la même qualité. Si l'on extrapole ces valeurs fittées pour des taux de cisaillement de 30 s^{-1} , on observe d'ores et déjà une différence notable entre les nombres de Weissenberg correspondants. Un facteur trois existe entre les deux nombres We , pour un taux de cisaillement qui reste assez peu élevé au regard des valeurs critiques qui nous intéressent.

Les incertitudes présentées ont été dissuasives quant à l'extrapolation de nombres de Weissenberg critiques. La mesure directe de We n'étant pas exploitable, nous avons préféré utiliser la relation définissant le nombre de Weissenberg pour un fluide de Maxwell :

$$We = \lambda \dot{\gamma} \quad \text{Eq. 3. 4.}$$

De plus, la mesure des modules complexes nous permet d'accéder à la grandeur $\frac{1}{\lambda \omega}$ par l'expression 3. 5.

$$\tan \delta = \frac{G''}{G'} = \frac{1}{\lambda \omega} \quad \text{Eq. 3. 5.}$$

La règle de Cox-Merz permet d'assimiler la pulsation ω au taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ mesuré notamment en grandes déformations. We est finalement défini par la relation :

$$We(\dot{\gamma}) = \frac{G'(\omega)}{G''(\omega)} \quad \text{Eq. 3. 6.}$$

On a superposé, sur la figure 3. 33, la variation de We calculé par la méthode précédente et de We mesuré en rhéométrie.

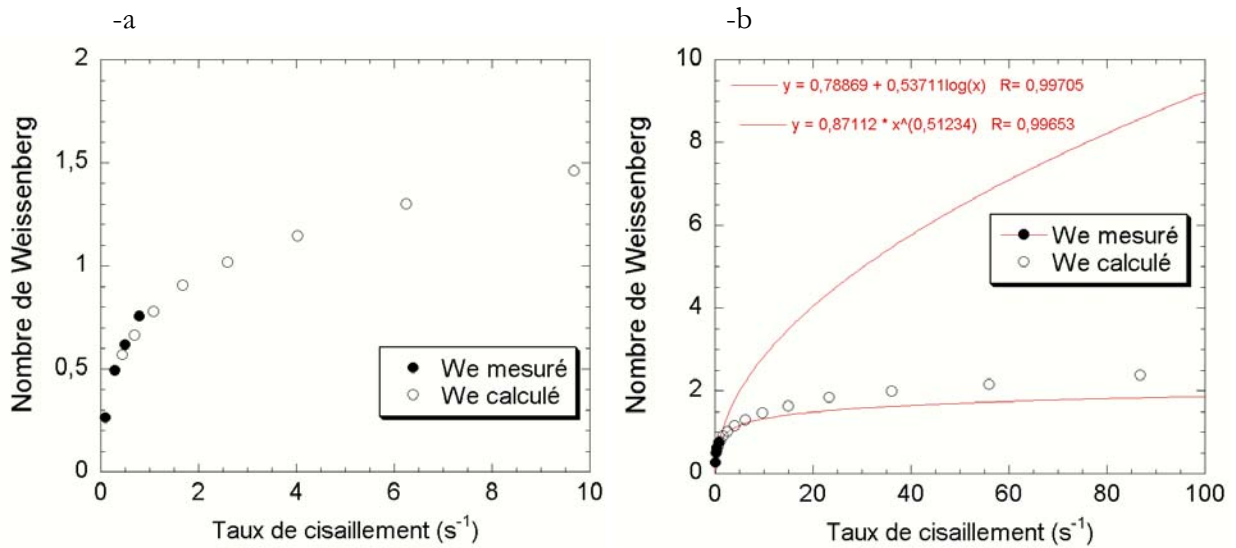


Fig. 3. 33 : Evolution du nombre de Weissenberg calculé par la relation 3. 6 et mesuré expérimentalement, à 200 °C. La figure (b) présente les mêmes courbes de tendance qu'utilisées figure 3. 32, à partir des données expérimentales.

D'après la figure 3. 33. a, la superposition des deux courbes, au vu de la gamme de taux de cisaillement commune, nous a semblée correcte pour pouvoir utiliser la méthode d'extrapolation de We présentée ci-dessus. Il existe toujours évidemment un doute quant à son comportement pour des taux de cisaillement supérieurs à 100 s⁻¹. La figure 3. 33. b nous montre toutefois que cette dernière méthode d'estimation se rapproche plutôt d'une courbe à tendance logarithmique.

La figure 3. 34 présente l'évolution du nombre de Weissenberg critique pour différentes conditions d'écoulement.

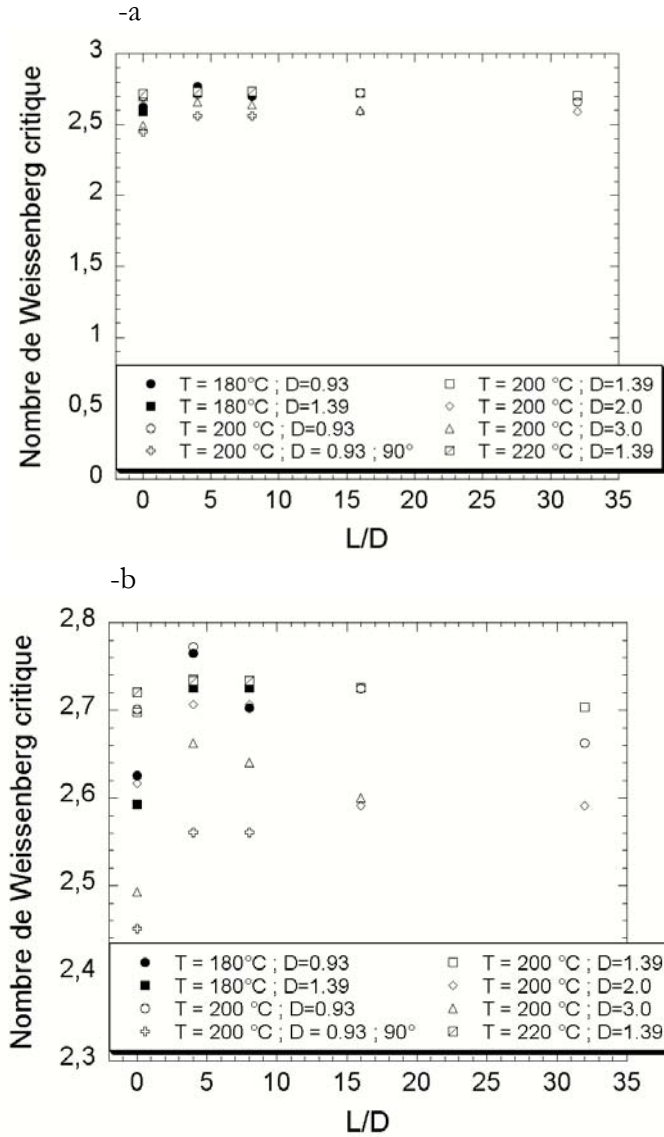


Fig. 3. 34 : Variation du nombre de Weissenberg critique pour différentes géométries et températures d'écoulement, avec $\alpha = 45^\circ$ dans sept cas sur huit. Le cas du convergent de demi-angle 90° est précisé sur la figure. La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

On note que les valeurs de We ne varient que très peu en fonction des conditions d'écoulement, prenant des valeurs comprises entre 2.45 et 2.77. Rappelons toutefois que le nombre de Weissenberg varie peu avec le taux de déformation considéré. Bagley [52], à l'inverse, montre que la déformation recouvrable critique, équivalente au nombre de Weissenberg, s'élève à 7 pour des polystyrènes. Vlachopoulos et Lidorikis [61] ont trouvé pour cinq polystyrènes de masses moléculaires différentes une valeur de la déformation recouvrable critique de l'ordre de 2.56. Les méthodes de calcul diffèrent en l'occurrence entre les deux études mais aussi par rapport à l'étude présentée précédemment. Il semble donc plus cohérent et moins hasardeux de comparer exclusivement, par une même méthode d'estimation du nombre de Weissenberg, les divers polymères caractérisés au sein de la présente étude. Ce point sera développé au paragraphe suivant.

Notons que le convergent de demi-angle 90° présente des valeurs critiques légèrement plus faibles que celles globalement obtenue avec un demi-angle de 45° . La moyenne des valeurs

relatives au demi-angle de 45° s'élève à 2.68 contre 2.52 avec le demi-angle de 90° . Cette tendance est la même que celle observée sur les taux de cisaillement ou les contraintes critiques.

Au même titre que la mesure de pression analysée par la méthode de Cogswell, il apparaît que la pertinence du nombre de Weissenberg soit limitée dans le sens où il ne permet pas de caractériser uniformément le déclenchement de l'instabilité d'une géométrie d'entrée à l'autre.

III. 7. Etude comparative des différents polymères utilisés

Les paragraphes présentés précédemment font état de nombreux résultats majoritairement généralisables aux trois matériaux (avec plus ou moins de précision). Les quelques différences, lorsqu'elles existent, ont alors été explicitées. Cette partie vise à mettre en relief les différences de comportement relevées entre le PP, le PS 1 et le PS 2, exclusivement en terme de déclenchement de l'instabilité.

III. 7. 1. Comparaison du PS 1 et du PS 2

Cette comparaison concerne l'usage de filières à convergent conique de demi-angle 45° . Le cas de l'écoulement du PS 2 dans une contraction brusque sera détaillé au chapitre V.

La figure 3. 35 présente les courbes d'écoulement apparentes obtenues pour les deux polystyrènes.

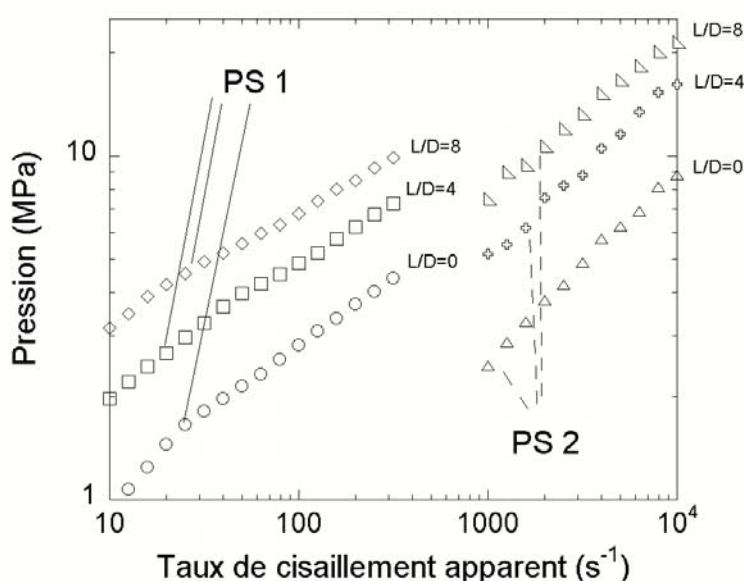


Fig. 3. 35 : Courbes d'écoulement apparentes du PS 1 et du PS 2, à 180 °C ($D = 0.93$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

Plus élastique, le PS 1 présente, dès les faibles débits ($\dot{\gamma}_{app} = 20$ à 30 s⁻¹), une instabilité hélicoïdale que le PS 2 n'atteint que pour des taux de cisaillement apparents de l'ordre de 1500 s⁻¹.

La contrainte de cisaillement critique associée au PS 2 varie assez peu en fonction des géométries imposées et possède une valeur très proche de 0.2 MPa. De plus, la contrainte élongationnelle estimée dans le convergent qui apparaissait comme un critère pertinent d'apparition du défaut hélicoïdal dans le cas du PS 1 semble également être appropriée dans le cas du PS 2. A 180 °C, les valeurs de contrainte élongationnelle critique oscillent entre 0.9 et 1.6 MPa (voir Annexe VII).

Comme l'on fait Spencer et Dillon en 1948 sur plusieurs polystyrènes [46], nous nous sommes intéressés au produit de la masse moléculaire par la contrainte de cisaillement critique (soit $\tau_w \times M_w$). Le produit de la masse par la contrainte élongationnelle critique a également pu être calculé ($\sigma_{el} \times M_w$). Pour une même température de 180 °C, nous avons calculé la valeur moyenne des contraintes critiques obtenues pour chacune des géométries étudiées. Le tableau suivant présente les calculs des produits pour les deux PS :

Polymère	$\tau_w \times M_w$ ($10^6 \text{ g}^2 \cdot \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-2} \cdot \text{mol}^{-1}$)	$\sigma_{el} \times M_w$ ($10^6 \text{ g}^2 \cdot \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-2} \cdot \text{mol}^{-1}$)
PS 1	31300	218700
PS 2	25000	133000

Tab. 3. 1 : Variation du produit $\tau_w \times M_w$ et $\sigma_{el} \times M_w$ pour les deux polystyrènes, à 180°C, dans les conditions critiques de déclenchement.

Spencer et Dillon ont trouvé constant le produit $\tau_w \times M_w$, quelles que soient les masses très différentes considérées. Dans notre cas, il apparaît que ce produit fluctue légèrement d'un matériau à l'autre. Il semble exister une relation plus complexe, relative à l'influence de la viscosité des deux produits sur le déclenchement du défaut. Le caractère élastique, qui est fortement couplé à la viscosité du matériau, est très différent entre les deux polystyrènes et pourrait expliquer partiellement de telles divergences.

Néanmoins, notons que ces résultats restent totalement en accord avec la littérature. En effet, l'initiation de l'instabilité a lieu pour des débits d'écoulement d'autant plus faibles que la masse moléculaire (ou la viscosité) est élevée [4, 45, 46] et que le fluide est élastique [20, 27]. Les propriétés viscoélastiques du PS 1 semblent en effet nettement plus prononcées que celles du PS 2. En outre, le PS 1 est capable d'atteindre des nombres de Weissenberg deux fois plus importants que le PS 2 à l'initiation de l'instabilité, comme en témoigne la figure 3. 36.

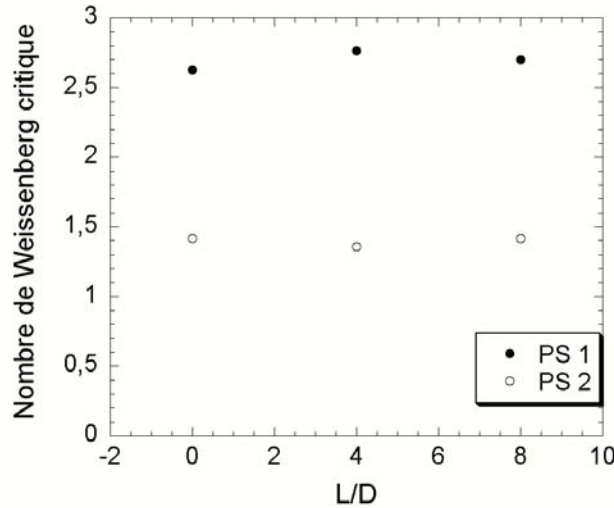


Fig. 3. 36 : Variation du nombre de Weissenberg critique des deux polystyrènes pour différents rapports L/D , à 180 °C ($D = 0.93 \text{ mm}$ et $\alpha = 45^\circ$).

Ainsi, ce dernier graphique présente la limite du nombre de Weissenberg à caractériser l'initiation de l'instabilité, d'un polystyrène à l'autre.

III. 7. 2. Comparaison du PS 1 et du PP

Les courbes d'écoulement apparentes, obtenues pour les deux matériaux, sont présentées sur la figure 3. 37.

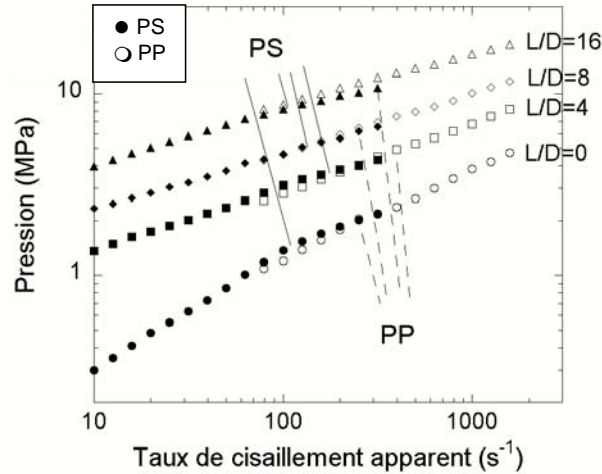


Fig. 3. 37 : Courbes d'écoulement apparentes du PS 1 et du PP, à 200 °C ($D = 1.39$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

On note que les courbes d'écoulement se superposent assez bien, ce qui s'explique par le fait que les viscosités des deux matériaux choisis sont très proches.

Dans les mêmes conditions d'écoulement, les taux de cisaillement apparent critiques sont très différents. Alors que le PS 1 présente un défaut hélicoïdal pour des débits réduits de l'ordre de 125 s^{-1} , le PP ne devient instable que pour des débits presque deux fois supérieurs.

Si l'on compare les niveaux de contrainte critiques, on constate que le polypropylène est capable d'atteindre des contraintes élongationnelles légèrement plus importantes :

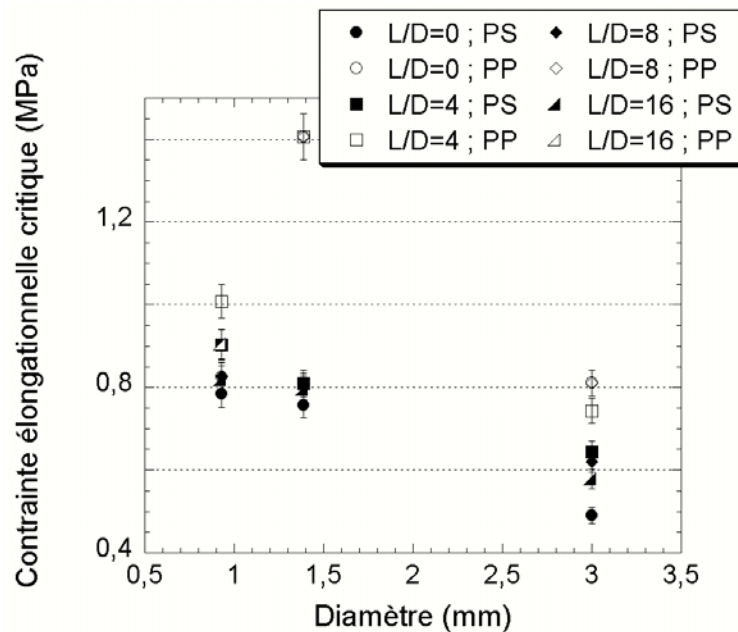


Fig. 3. 38 : Variation de la contrainte élongationnelle critique pour différents diamètres et longueurs de filière, à 200 °C, pour le PS 1 (sigles pleins) et le PP (sigles vides).

Nous avons par ailleurs vérifié que les taux de déformation critiques étaient eux aussi plus élevés que pour le PS 1 :

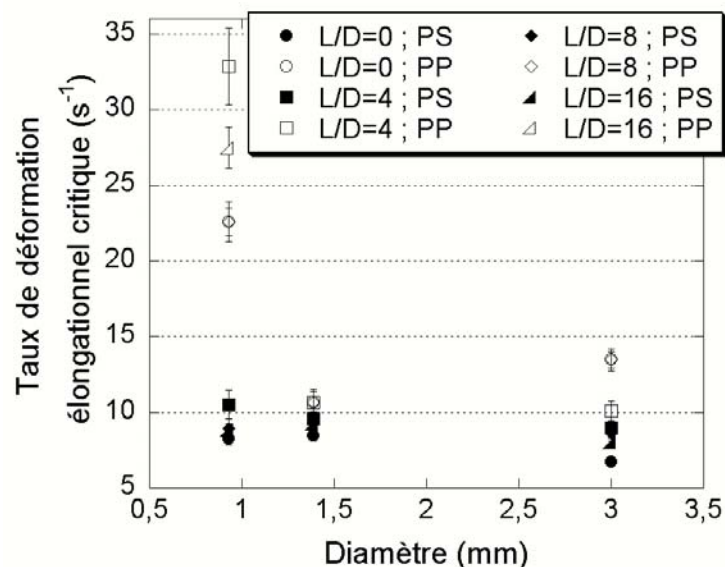


Fig. 3. 39 : Variation du taux de déformation élongationnel critique pour différents diamètres et longueurs de filière, à 200 °C, pour le PS 1 (sigles pleins) et le PP (sigles vides).

Pour certaines géométries, alors que les taux de déformation critiques du PS valent 10 s⁻¹, le PP possède des valeurs plus conséquentes. En l'occurrence, pour un rapport de longueur donné, le taux de déformation critique associé au rapport de contraction le plus sévère ($D = 0.93$ mm) atteint la valeur de 33 s⁻¹ pour le PP. Par ailleurs, les nombres de Weissenberg critiques associés au PP sont de l'ordre de 3.1 (Annexe VIII. 1) alors que le PS 1 présente des valeurs proches de 2.7.

Rappelons qu'il s'agit de deux matériaux au comportement rhéologique très proche, aussi bien en terme de cisaillement qu'en élongation. En outre, nous avons constaté que le PP présentait un caractère élastique plus prononcé (d'après les mesures du nombre de Weissenberg). Ainsi, sachant que les deux matériaux sont aussi visqueux l'un que l'autre, le PP de nature plus élastique devrait présenter un défaut de volume pour de plus faibles débits d'écoulement, comme le décrit la littérature [20, 27]. C'est exactement l'inverse qui est observé dans ce paragraphe.

La rhéologie ne nous permet pas d'expliquer directement le phénomène observé. Les différences de structure moléculaire jouent assurément un rôle important dans la déstabilisation de l'écoulement des deux polymères. Malheureusement, nous possédons trop peu d'informations pour pouvoir conclure : la comparaison de deux matériaux de structure moléculaire différente reste très délicate.

III. 8. Conclusion

L'étude de l'écoulement axisymétrique nous a permis de mettre en évidence certains paramètres influant sur le déclenchement du défaut hélicoïdal. Dans le cas de l'amorçage de l'instabilité, les grandeurs caractéristiques dites « critiques » sont clairement tributaires des pressions régnant notamment dans la région d'entrée de la filière.

De plus, à son apparition, le défaut possède une certaine fréquence qui n'évolue pas ensuite avec le débit réduit, contrairement aux volumes hélicoïdaux qui augmentent de façon linéaire. De plus, la longueur de la filière a une influence, non pas sur l'amortissement de l'instabilité le long du

capillaire, mais sur l'ampleur et la fréquence de l'instabilité à son apparition même, soit à l'entrée du capillaire.

Par ailleurs, pour différentes températures, le défaut apparaît pour les mêmes niveaux de pression, mais est repoussé à des débits réduits plus importants si l'on utilise des températures plus élevées. On note une bonne superposition, selon le principe temps/température, des ruptures de pente des courbes d'écoulement apparentes, propres à l'apparition du défaut. On a pu de plus remarquer que les fréquences de l'instabilité, très différentes d'une température à l'autre, peuvent se superposer toujours selon l'application du principe de superposition temps/température. Ceci montre que l'instabilité est très fortement liée aux paramètres viscoélastiques du polymère, qui régissent à la fois son déclenchement et son expression propre (notamment en terme de fréquence).

Il semble que le défaut, qui est initié à l'entrée du capillaire, dépende fortement du caractère élongationnel de l'écoulement dans le convergent. La contrainte et le taux de déformation élongationnels, ainsi que le nombre de Weissenberg, apparaissent comme d'intéressants critères, susceptibles de traduire le déclenchement de l'instabilité. Ces critères s'avèrent néanmoins insuffisants pour décrire l'apparition de l'instabilité d'une géométrie d'entrée à l'autre.

Enfin, le comportement des trois polymères étudiés semble présenter de nombreuses similitudes dans l'initiation et le développement du défaut hélicoïdal. Au vu de ces similitudes, on peut supposer que les mécanismes d'initiation sont assez proches, tout en gardant à l'esprit que le déclenchement de l'instabilité reste largement tributaire de la structure moléculaire du matériau.

CHAPITRE IV

ETUDE DU DEFAUT VOLUMIQUE EN FILIERE PLATE

CHAPITRE IV

ETUDE DU DEFAUT VOLUMIQUE EN FILIERE PLATE

Résumé

Ce chapitre est dédié à l'étude de l'instabilité volumique en filière plate transparente alimentée par une extrudeuse. Les dispositifs de biréfringence et de vélocimétrie laser-Doppler ont permis la caractérisation de l'écoulement, particulièrement en amont de la contraction.

Ces travaux confirment le fait que l'instabilité volumique est initiée à l'entrée de la filière. Elle se caractérise, au delà d'un certain débit, par des oscillations du champ de contrainte et de vitesse de l'écoulement d'entrée. Nous avons décrit son initiation, les différents régimes d'écoulement qui la caractérisent, aussi bien en biréfringence d'écoulement qu'en vélocimétrie laser-Doppler. Ainsi, une approche descriptive et plutôt qualitative du phénomène lié à la déstabilisation d'entrée a été mise en place.

De plus, l'influence de la géométrie d'écoulement a été étudiée par l'utilisation de filières possédant divers rapports de contraction ou géométries de convergent. En outre, de nombreux résultats obtenus en rhéométrie capillaire ont été confirmés par les présents travaux.

Enfin, notons que ce chapitre s'inscrit dans la perspective du chapitre V où les critères de déclenchement de l'instabilité seront présentés, ainsi que les interprétations qui en découlent.

Table des Matières

IV. 1. Etude de l'instabilité volumique dans une contraction brusque par biréfringence d'écoulement.....	96
IV. 1. 1. Courbes d'écoulement apparentes et clichés de biréfringence associés.....	96
IV. 1. 2. Quantification des clichés de biréfringence.....	99
IV. 2. Etude de l'instabilité volumique en sortie de filière	100
IV. 2. 1. Morphologie des extrudats obtenus	100
IV. 2. 2. Quantification de l'instabilité, en amont et en aval de la filière.....	101
IV. 3. Etude de l'écoulement d'entrée dans une contraction brusque par vélocimétrie laser-Doppler.....	103
IV. 3. 1. Etude de l'écoulement d'entrée en régime stable	103
IV. 3. 2. Etude de l'écoulement secondaire en régime stable.....	105
IV. 3. 3. Etude de l'écoulement d'entrée durant le développement de l'instabilité volumique périodique	106
IV. 3. 4. Etude de la transition entre l'instabilité volumique périodique et l'instabilité chaotique	112

IV. 4. Influence de la température	115
IV. 4. 1. Déclenchement du défaut volumique périodique	115
IV. 4. 2. Fréquence du défaut volumique périodique.....	116
IV. 5. Influence du rapport de contraction	117
IV. 5. 1. Déclenchement du défaut volumique périodique	117
IV. 5. 2. Fréquence du défaut volumique périodique.....	119
IV. 6. Influence de la forme du convergent d'entrée	120
IV. 6. 1. Déclenchement et fréquence du défaut volumique périodique avec un entrefer H de 1.0 mm	120
IV. 6. 2. Déclenchement du défaut volumique périodique avec un entrefer H de 0.5 mm	123
IV. 6. 3. Déclenchement du défaut volumique périodique dans le cas du polypropylène.....	124
IV. 7. Conclusion.....	125

Dans cette étude, seuls le PS 1 et le PP ont été caractérisés. Une fois de plus, le PS 1 a fait l'objet de la majorité des expériences, aussi bien en biréfringence qu'en vélocimétrie laser-Doppler. Par défaut, nous présenterons essentiellement les résultats relatifs à ce matériau. Lorsque les résultats feront référence au PP, le texte le spécifiera.

IV. 1. Etude de l'instabilité volumique dans une contraction brusque par biréfringence d'écoulement

De nombreux résultats associés à la biréfringence d'écoulement et présentés ci-après ont fait l'objet d'une publication [62]. Dans cette partie de l'étude, nous nous attachons à décrire le comportement du fluide uniquement dans la région d'entrée. L'écoulement de sortie sera étudié au paragraphe IV. 2.

IV. 1. 1. Courbes d'écoulement apparentes et clichés de biréfringence associés

Des essais de biréfringence ont fait l'objet de nos premières démarches expérimentales. Cette étude débute avec l'utilisation d'une filière à contraction brusque. Comme en rhéométrie capillaire, on mesure une pression en amont de la contraction, en fonction du taux de cisaillement apparent. La figure 4. 1. présente une courbe d'écoulement apparente obtenue à 180 °C, ainsi que les clichés de biréfringence associés à quelques débits caractéristiques.

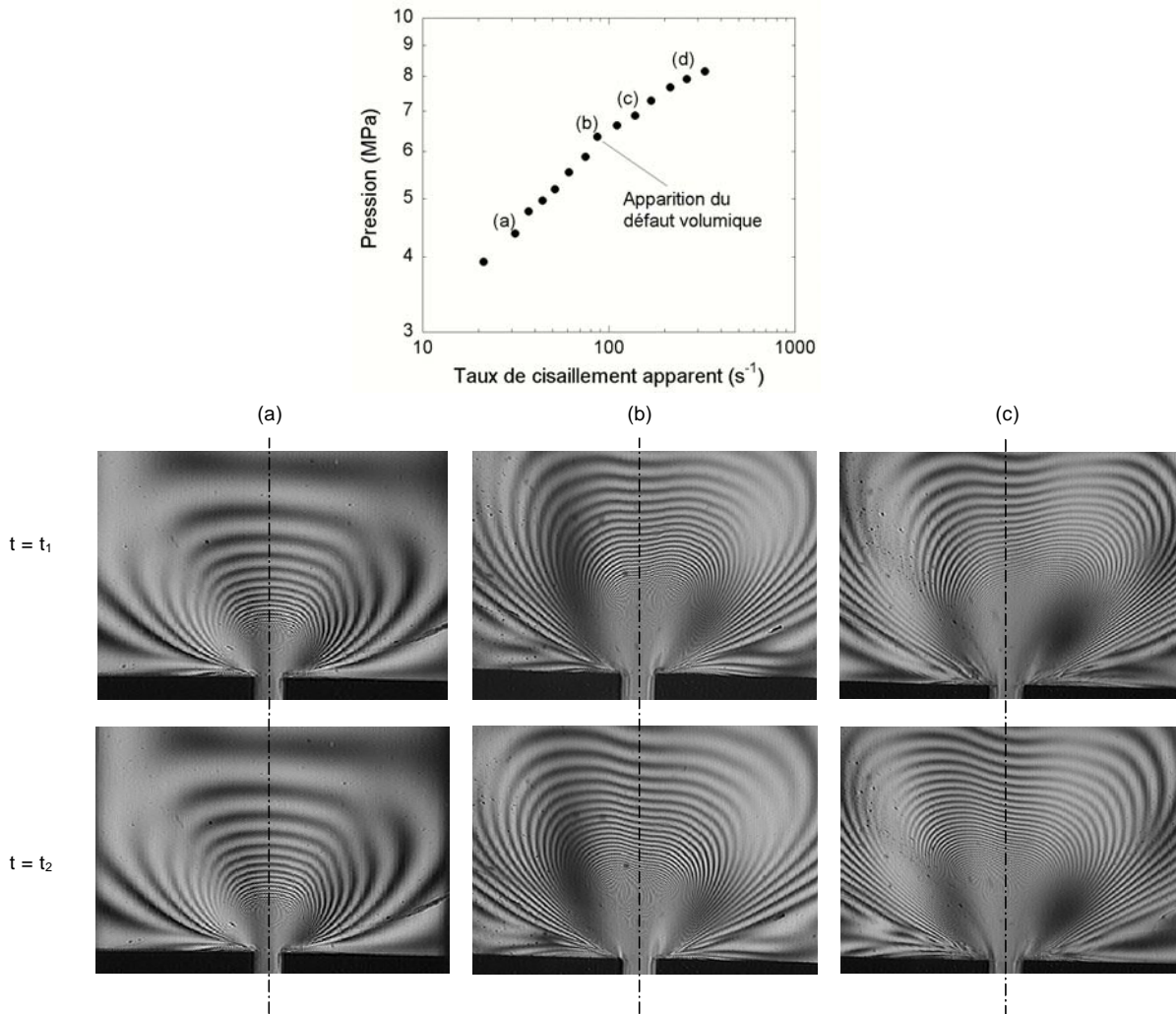


Fig. 4. 1 : Courbe d'écoulement apparente et clichés de biréfringence associés, pour différents taux de cisaillement apparents, à 180 °C ($L = 25.0$ mm, $H = 1.0$ mm et $\alpha = 90^\circ$). (a) : $\dot{\gamma}_{app} = 30$ s $^{-1}$, (b) : $\dot{\gamma}_{app} = 87$ s $^{-1}$ et (c) : $\dot{\gamma}_{app} = 263$ s $^{-1}$.

Les isochromes correspondant au point (a) sont stationnaires. En fonction du temps, elles demeurent complètement stables et symétriques par rapport à l'axe de symétrie du réservoir, représenté en pointillé sur les figures.

Pour un taux de cisaillement apparent de l'ordre de 90 s^{-1} , les franges perdent leur symétrie et deviennent instationnaires. Elles commencent à osciller périodiquement, dans la direction perpendiculaire à l'écoulement principal, alternativement suivant les Y positifs et négatifs. Cette perte de symétrie s'observe très nettement sur les clichés 4. 1. b et 4. 1. c. Les temps t_1 et t_2 annotés sur les figures correspondent aux deux positions extrêmes que peuvent adopter les isochromes dans le réservoir. Cette déstabilisation de franges est associée à une perte de symétrie de l'écoulement amont qui atteint la contraction de façon asymétrique. On imagine aisément que la propagation de la déstabilisation de l'écoulement principal le long du canal engendre en sortie de filière des distorsions de volume conséquente sur l'extrudat.

Les films vidéo associés à la déstabilisation de l'écoulement d'entrée peuvent être visionnés à partir du site web suivant : http://eve.cma.fr/presentation_films-eve.htm. Ils témoignent notamment de la propagation de la déstabilisation amont le long du canal d'écoulement. De plus, lors du développement de l'instabilité, les oscillations de franges possèdent une amplitude de plus en plus élevée. La comparaison des clichés (b) et (c) considérés aux mêmes temps t_1 ou t_2 illustre cette constatation. L'écart des positions extrémales des isochromes par rapport à l'axe de symétrie est en effet plus important sur les figures 4. 1. c que sur les figures 4. 1. b.

Le polypropylène présente également, en biréfringence d'écoulement, une déstabilisation des franges, au delà d'un débit critique. Les clichés de biréfringence sont présentés à la figure 4. 2, de la même façon que pour le PS 1. Le régime correspondant aux clichés de la figure 4. 2. a est stable. Les clichés 4. 2. b et 4. 2. c sont relatifs au déclenchement de l'instabilité et à son développement.

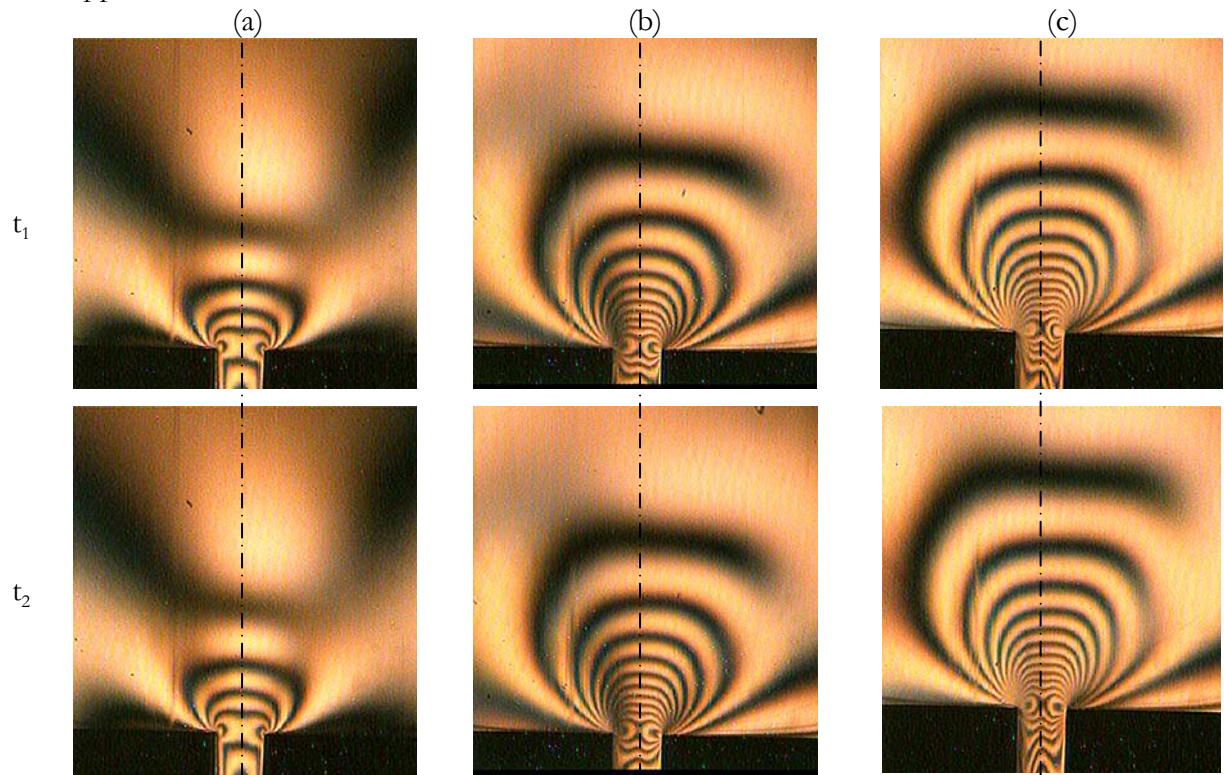


Fig. 4. 2 : Clichés de biréfringence obtenus avec le polypropylène, pour différents taux de cisaillement apparents, à 200°C ($L = 31.13 \text{ mm}$, $H = 1.5 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$). (a) : $\dot{\gamma}_{app} = 30 \text{ s}^{-1}$, (b) : $\dot{\gamma}_{app} = 150 \text{ s}^{-1}$ et (c) : $\dot{\gamma}_{app} = 225 \text{ s}^{-1}$.

D'après ces photos, le régime stable possède les mêmes caractéristiques que pour le PS 1. Par contre, la déstabilisation des isochromes est nettement moins observable (figures 4. 2. b et 4. 2. c). En effet, on a pu noter visuellement que l'amplitude des déplacements de franges est moins importante que dans le cas du PS 1, même pour des débits relativement élevés. Les franges situées en amont de la contraction (frange d'ordre 1 à 10 sur la figure 4. 2. b) ne sont animées que d'un très faible mouvement oscillatoire. La propagation de l'instabilité reste néanmoins observable à partir des clichés, particulièrement en aval de la contraction où les franges ont totalement perdu leur symétrie.

En rhéométrie capillaire, dans les mêmes conditions d'écoulement, il était impossible d'émettre une conclusion dans la comparaison des volumes hélicoïdaux et de la fréquence entre le PP et le PS 1. D'un diamètre à l'autre, les fréquences et volumes hélicoïdaux étaient véritablement différents pour le PP et ainsi, d'un diamètre à l'autre, la comparaison entre les deux matériaux pouvait apporter des conclusions opposées.

Néanmoins, les différences observées dans la déstabilisation du PP et du PS 1 peuvent s'expliquer par le fait que les températures d'extrusion ne sont pas les mêmes. En effet, l'extrusion du PP a été effectuée à 200 °C, alors qu'elle est de 180 °C pour le PS 1.

Les résultats issus de l'estimation des volumes hélicoïdaux en rhéométrie capillaire peuvent partiellement expliquer les divergences observées. En effet, on peut supposer que le volume hélicoïdal en sortie de filière est directement proportionnel à l'amplitude de la déstabilisation de l'écoulement d'entrée. La figure 4. 3 rappelle l'évolution du volume hélicoïdal en fonction du taux de cisaillement apparent.

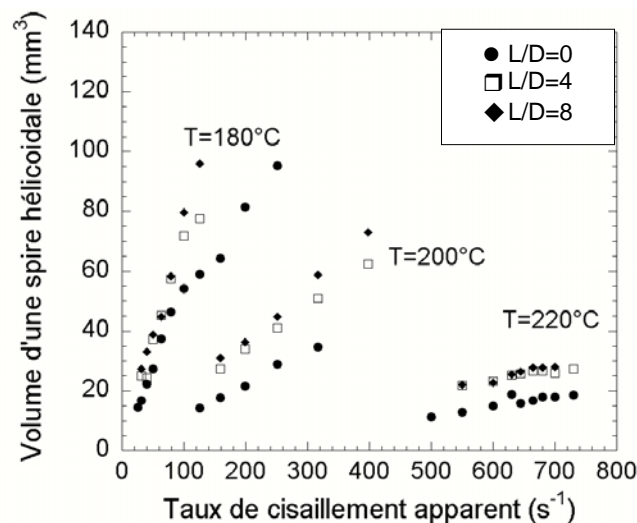


Fig. 4. 3 : Variation du volume d'une périodicité du PP, en fonction du taux de cisaillement apparent, pour trois températures et trois rapports de longueur ($D = 1.39$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

Pour un même taux de cisaillement apparent, on note que le volume hélicoïdal diminue nettement avec l'utilisation d'une température d'écoulement élevée. Le fait d'observer de faibles amplitudes de déplacements d'isochromes, dans le cas du PP à 200 °C par rapport au cas du PS 1 à 180 °C est tout à fait en accord avec ce résultat. Néanmoins, la comparaison effectuée entre ces deux matériaux reste hasardeuse et il reste délicat d'affirmer que cette tendance est uniquement due à la température.

De plus, lors de la déstabilisation de l'écoulement d'entrée du PP et dans une région très confinée autour de la contraction et notamment près des coins de l'orifice, l'écoulement semble beaucoup

plus instable. Ceci laisse supposer que l'instabilité pourrait être initiée à proximité du plan de contraction. De plus, on remarque que l'amplitude de la déstabilisation augmente avec le débit réduit.

Ces observations confirment très nettement l'initiation de l'instabilité de volume dans la région d'entrée de la filière [20, 23].

L'apparition du défaut volumique est indiquée sur la courbe d'écoulement apparente de la figure 4. 1. Comme observé en rhéométrie capillaire, la courbe présente clairement une rupture de pente au point de déclenchement de l'instabilité. Cette observation est largement confortée par la littérature [20, 26, 41].

IV. 1. 2. Quantification des clichés de biréfringence

La caractérisation du défaut de volume a été effectuée à partir des clichés de biréfringence, par analyse d'images.

Si l'on appelle Δt l'intervalle de temps compris entre deux mouvements successifs d'isochromes, $1/\Delta t$ devrait représenter la fréquence de l'instabilité, à supposer que les mouvements soient périodiques. Nous nous sommes donc attachés à quantifier le terme $1/\Delta t$ en fonction du temps et en fonction du taux de cisaillement apparent. La figure 4. 4 présente les résultats obtenus.

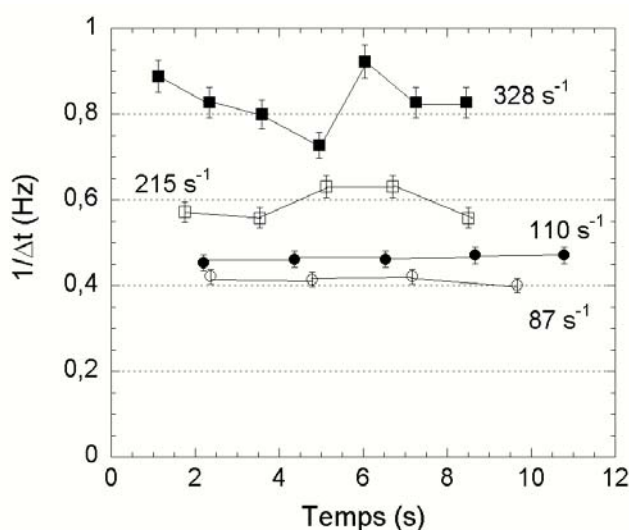


Fig. 4. 4 : Evolution temporelle du terme $1/\Delta t$ mesuré à partir des mouvements d'isochromes, pour différents taux de cisaillement apparents, à 180 °C ($L = 25$ mm, $H = 1.0$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

Pour un taux de cisaillement apparent de 87 s⁻¹, relatif au déclenchement du défaut volumique, les mouvements oscillatoires de franges sont strictement périodiques, aux incertitudes de mesure près. Si le débit réduit augmente pour atteindre une valeur de 110 s⁻¹, les mouvements de franges restent périodiques. On remarque qu'avec le débit, le terme $1/\Delta t$ n'évolue que très peu. Dans ces conditions, on pourra par la suite le désigner par le terme « fréquence ».

Ainsi, on relève une fréquence de l'ordre de 0,41 et 0,46 Hz pour des taux de cisaillement respectifs de 87 et 110 s⁻¹. Ces résultats sont en accord avec ceux de la rhéométrie capillaire où l'on montre que, lors du développement du défaut hélicoïdal, la fréquence demeure constante avec le taux de cisaillement apparent.

Ce régime d'écoulement semble donc correspondre à l'équivalent du défaut hélicoïdal observé en écoulement axisymétrique. Comme la forme de l'extrudat en filière plate ne peut être hélicoïdale, nous désignerons à l'avenir dans ce chapitre par le terme de « défaut volumique périodique »

l'instabilité observée. C'est d'ailleurs essentiellement à ce défaut que nous nous sommes intéressés au cours de cette étude.

Pour des débits réduits plus élevés, notamment pour un taux de cisaillement apparent de 215 s^{-1} , on remarque que $1/\Delta t$ augmente et prend une valeur d'environ 0.59 Hz . De plus, il est important de noter que les mouvements d'isochromes deviennent sensiblement moins périodiques. La valeur de $1/\Delta t$ a tendance à fluctuer avec le temps. Pour des débits réduits encore plus importants, supérieurs à 300 s^{-1} , on note une amplification de ce phénomène. L'observation du cliché de biréfringence associé nous apprend que les déplacements de franges deviennent de plus en plus saccadés et complexes. Des modes additionnels apparaissent et viennent se greffer au mode principal. Les mouvements ne sont plus aussi simples que lors du premier régime d'écoulement. De légères particules présentes dans l'écoulement (résidus de catalyse, poussières ...) sont aléatoirement fortement accélérées, décélérées puis figées ou encore accélérées dans un sens contraire à l'écoulement principal.

Ce second régime, caractérisé par la perte de périodicité des oscillations de franges, semble correspondre à la transition entre le défaut hélicoïdal et le défaut chaotique, généralement observée en rhéométrie capillaire.

IV. 2. Etude de l'instabilité volumique en sortie de filière

IV. 2. 1. Morphologie des extrudats obtenus

Au début de notre étude, des prélèvements d'extrudats refroidis à l'air ambiant ont également été effectués pour chaque taux de cisaillement apparent, au même titre que l'acquisition de clichés de biréfringence. Comme nous l'avons spécifié précédemment, la forme hélicoïdale étudiée en écoulement axisymétrique n'est plus observée lors de l'écoulement en filière plate : nous n'utiliserons plus le terme de « défaut hélicoïdal ».

L'apparition du défaut volumique périodique est très difficile à observer en sortie de filière plate. En effet, l'extrudat est affecté par les effets de bords. Même en conditions stables, il présente des irrégularités de volume puisque le fluide s'écoule plus rapidement au centre de l'écoulement que sur les bords. Le défaut volumique se distingue mal de ce phénomène.

Pour des débits réduits peu élevés, pour lesquels le défaut n'est pas encore apparu, le phénomène d'effets de bords est déjà présent mais à faible échelle. On constate la présence d'ondulations légères de la matière dès les débits réduits les plus faibles. La photo 4. 5 présente ce type d'ondulations décelables non pas visuellement mais au toucher exclusivement.

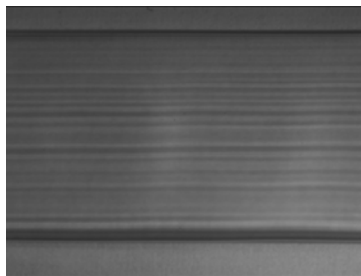


Fig. 4. 5 : Aspect d'un extrudat pour un taux de cisaillement apparent de 103 s^{-1} , à 200°C ($L = 25 \text{ mm}$, $H = 1.0 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$).

Les photos de la figure 4. 6 présentent la morphologie d'extrudats pour des taux de cisaillement apparent supérieurs.

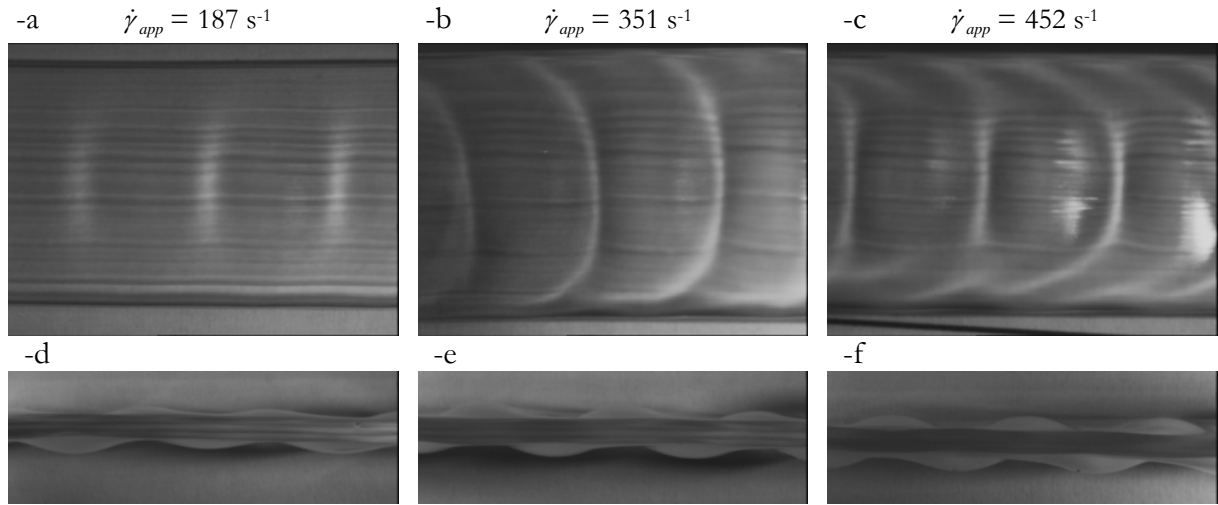


Fig. 4. 6 : Aspect d'extrudats en vue de face (a, b et c) et de profil (d, e et f), à 200 °C et pour différents taux de cisaillement apparents ($L = 25$ mm, $H = 1.0$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

Pour les taux de cisaillement présentés, le défaut périodique s'est d'ores et déjà développé d'après l'observation de l'écoulement amont. L'extrudat présente sur la première photo des rides périodiques, dont la forme est plutôt rectiligne, en vue de face. Pour des débits plus importants, on remarque que ces rides adoptent une forme parabolique (figures 4. 6. b et 4. 6. c) et deviennent plus profondes (figures 4. 6. e et 4. 6. f). Ainsi, les effets de bord semblent de plus en plus prononcés et l'observation du défaut de volume reste très délicate d'interprétation. On imagine que l'évolution de la morphologie d'extrudat soit fortement liée au développement couplé du défaut de volume et des effets de bords. Contrairement au cas de la rhéométrie capillaire, le manque de discernement des deux phénomènes nous a conduit à porter notre attention sur l'écoulement amont essentiellement. Aucune quantification de l'instabilité volumique à partir d'extrudats n'a été mise en place dans ce chapitre (à l'exception faite du cas de la filière axisymétrique, présenté ci-dessous).

IV. 2. 2. Quantification de l'instabilité, en amont et en aval de la filière

Nous nous sommes intéressés à la propagation de l'instabilité le long du canal d'écoulement. Nous avons voulu vérifier si la fréquence relative au défaut volumique périodique était la même à l'entrée et en sortie de filière.

L'écoulement parallélépipédique du canal ne nous permet pas de détecter et caractériser le défaut à cause des effets de bord. Nous avons donc utilisé une filière de type « capillaire » possédant un canal axisymétrique. Le rapport des sections (réservoir/canal) associé à cette géométrie est proche de celui étudié précédemment (de l'ordre de 14.5/1 et 18/1 pour les géométries axisymétrique et parallélépipédique, respectivement). Rappelons par ailleurs que la longueur du canal a été choisie de telle sorte que la longueur de l'écoulement soit maximale, au vu de l'espace d'écoulement disponible ($L=35$ mm).

L'enchaînement de la géométrie d'écoulement issu du réservoir dans le canal est de type parallélépipédique/axisymétrique. Cette configuration a rendu possible l'observation d'une déstabilisation en amont de la contraction, suivie de distorsions volumiques très marquées au sein de l'extrudat. La cinématique liée au déplacement des isochromes est exactement la même que celle décrite avec une filière parallélépipédique. L'estimation de la fréquence de sortie de filière a

été réalisée selon le même protocole qu'adopté en rhéométrie capillaire, par pesée des extrudats. Le déclenchement de la déstabilisation de l'écoulement principal à l'entrée de la filière s'accompagne de distortions hélicoïdales en sortie de filière. La figure 4. 7 montre la comparaison des fréquences mesurées à l'entrée et à la sortie de filière, lors du développement du défaut volumique périodique.

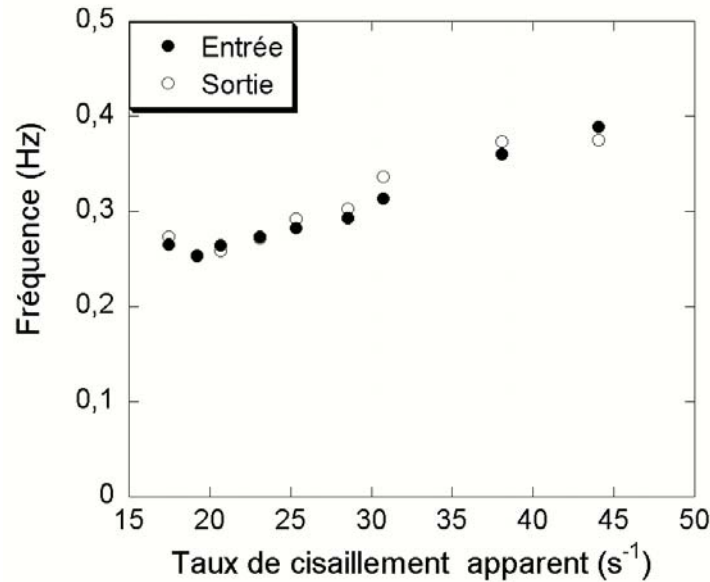


Fig. 4. 7 : Fréquence de l'instabilité volumique périodique mesurée à l'entrée et en sortie de filière, en fonction du taux de cisaillement apparent, à 180 °C, avec une filière axisymétrique ($L = 35$ mm, $D = 4.0$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

Il apparaît que la fréquence de l'instabilité est conservée le long de l'écoulement. Ce résultat confirme les travaux de Piau et al. [23] et Nigen et al. [35] sur des PDMS.

Cette expérience nous a entre autre permis de rapprocher les diverses conclusions obtenues lors de la quantification de l'instabilité en rhéométrie capillaire et en filière plate.

Ainsi, si l'on considère les extrudats issus de la rhéométrie capillaire et les mouvements d'isochromes obtenus en filière plate, on peut résumer l'initiation et le développement du défaut volumique périodique de façon assez simple. Le défaut semble se déclencher pour un taux de cisaillement apparent donné (ou plutôt un nombre de Weissenberg donné), avec une fréquence définie. Lorsque le débit réduit augmente, la fréquence n'évolue plus ou très peu. Parallèlement, l'amplitude à la fois des oscillations d'isochromes à l'entrée de filière et des distortions hélicoïdales en sortie de filière augmente. Pour des débits plus importants, on assiste à une perte de périodicité des déplacements de franges correspondant, en rhéométrie capillaire, à une dégénérescence de la forme hélicoïdale parfaite de l'extrudat. Comme énoncé précédemment, il s'agit assurément de la transition entre un défaut de type hélicoïdal (ou volumique périodique) et un défaut de type chaotique.

Par la suite, nous nous intéresserons essentiellement au cas du défaut volumique périodique. Sa fréquence propre sera notamment systématiquement estimée à partir des oscillations d'isochromes.

IV. 3. Etude de l'écoulement d'entrée dans une contraction brusque par vélocimétrie laser-Doppler

Pour compléter les expériences menées en biréfringence d'écoulement, nous nous sommes intéressés à la mesure de vitesses locales exclusivement dans la région d'entrée.

Cette étude est une synthèse d'une partie des mesures effectuées par vélocimétrie laser-Doppler. Elle présente les premières investigations qui nous ont permis de décrire l'écoulement d'entrée, avant sa déstabilisation, mais également pendant le développement du défaut volumique périodique et du défaut chaotique.

Deux dispositifs expérimentaux associés à une filière plate transparente équipée d'un système de vélocimétrie laser-Doppler (LDV) ont pu être utilisés : en premier lieu, il s'agit du dispositif présenté au chapitre II et implanté au *CEMEF*. Par ailleurs, nous avons pu utiliser, dans le cadre du projet européen *3PI*, le système de vélocimétrie laser-Doppler implanté au laboratoire du *LSP*, à Erlangen.

Ces deux systèmes LDV sont fournis par le même fabricant *DANTEC* et répondent exactement au même principe expérimental, présenté au chapitre II. Le dispositif du *LSP* présente néanmoins l'avantage de posséder deux sources laser, permettant la mesure simultanée de deux composantes de vitesses. Expérimentalement, il est ainsi plus aisé de mesurer et construire un champ de vitesse dans un plan de l'espace donné. L'inconvénient majeur de ce dernier dispositif expérimental est dû au fait qu'il n'est équipé que d'un seul verre transparent, rendant toute expérience de biréfringence d'écoulement impossible.

Nous avons utilisé des géométries de filières dont les dimensions sont assez proches d'un laboratoire à l'autre. Les rapports de contraction respectifs possèdent une valeur de 18/1, avec un entrefer H de 1.0 et de 0.78 mm pour le *CEMEF* et le *LSP*, respectivement.

La figure suivante est simplement destinée à rappeler la géométrie d'écoulement utilisée, présentée au chapitre II.

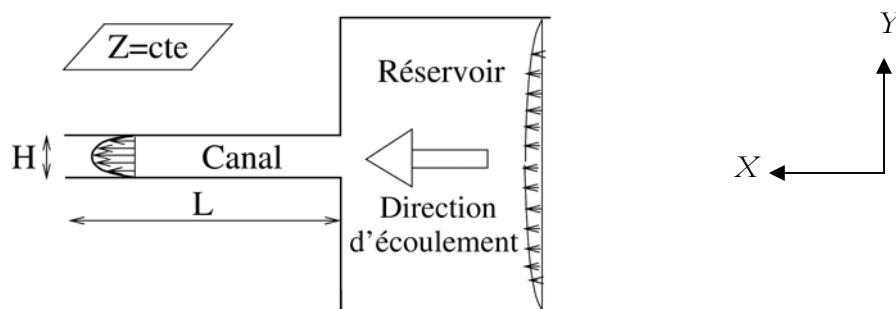


Fig. 4. 8 : Géométrie de la filière plate, dans le plan principal d'extrusion $Z = 0$ [7].

Enfin, précisons que toutes les mesures de vitesses présentées dans ce paragraphe ont été effectuées au centre de la largeur de l'écoulement, soit dans un plan d'équation $Z = 0$.

IV. 3. 1. Etude de l'écoulement d'entrée en régime stable

La figure 4. 9 présente le champ de vitesse mesuré dans le réservoir, pour un taux de cisaillement apparent de 42 s^{-1} .

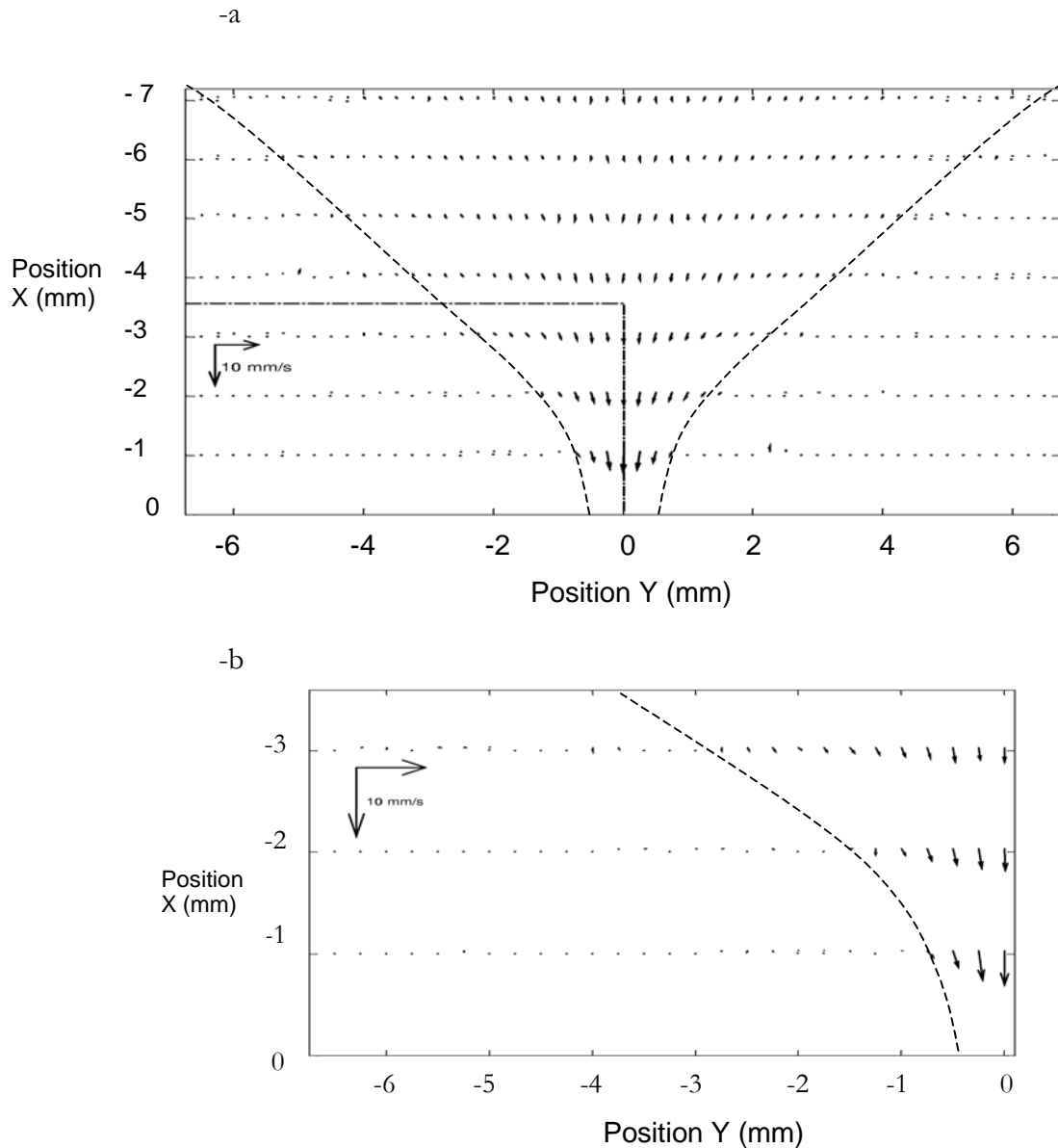


Fig. 4. 9 : Champ de vitesse mesuré dans le réservoir, en amont de la contraction, pour un taux de cisaillement apparent de 42 s^{-1} , à 180°C ($L = 30 \text{ mm}$, $H = 0.78 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$). La figure (b) est une représentation du quart de l'écoulement présenté figure (a).

Les vitesses sont représentées par des vecteurs de norme plus ou moins élevée. A l'approche de la contraction, on note que les vitesses situées au centre du réservoir augmentent, d'autant plus nettement que l'orifice d'écoulement est proche. Dès une abscisse X de l'ordre de -4 mm , on remarque que l'écoulement anticipe la contraction, présentant un profil de vitesse plus hétérogène dans la direction Y . Le profil mesuré est alors totalement symétrique par rapport à l'axe de symétrie, selon la direction X du réservoir.

Les normes des vitesses situées dans les coins du réservoir, de part et d'autre de la contraction, indiquent que le fluide est animé d'une vitesse qui est soit nulle, soit trop faible pour pouvoir être détectée par le système de mesure. Cette constatation est notamment observable sur la figure 4. 9. b.

Ces mesures montrent qu'il existe un écoulement secondaire, piégé de part et d'autre de la contraction, formant des « zones mortes » dans l'écoulement. Il existe un angle de l'ordre de 100°

entre l'écoulement principal et l'écoulement secondaire. Il s'agit d'un résultat tout à fait en accord avec les travaux de Ballenger et al. [20].

IV. 3. 2. Etude de l'écoulement secondaire en régime stable

La figure suivante montre la distribution de vitesses $V_Y(Y)$ mesurées dans la direction perpendiculaire à l'écoulement principal. Ces profils ont été construits près du plan de la contraction (Y, Z), pour trois positions différentes telles que $X = -0.1$, $X = -1$ et $X = -2$ mm. Le taux de cisaillement associé est légèrement plus élevé que précédemment et prend la valeur de 60 s^{-1} .

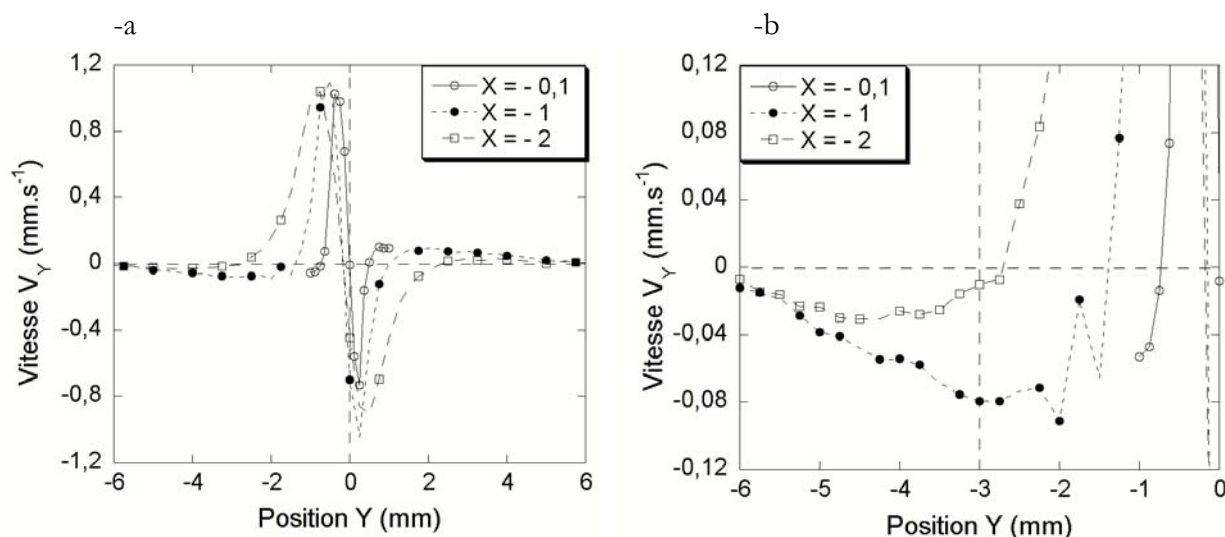


Fig. 4. 10 : Profil de vitesse $V_Y(Y)$, pour un taux de cisaillement apparent de 60 s^{-1} et pour les positions $X = -0.1$, $X = -1$ et $X = -2$ mm, à 180°C ($L = 30 \text{ mm}$, $H = 0.78 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$). La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

La symétrie de la géométrie d'entrée nous permet d'obtenir des profils de vitesses parfaitement symétriques par rapport aux axes principaux du réservoir, pour des conditions d'écoulement stables.

Sur la moitié gauche de la figure 4. 10. a, soit pour des positions de Y négatives, les vitesses positives indiquent que le fluide s'écoule du bord du réservoir vers le centre de l'écoulement. Par conséquent, les vitesses négatives prouvent que l'écoulement a lieu dans un sens opposé. Pour les trois positions étudiées, on remarque que la vitesse change de signe. Sur la partie gauche de la figure, la vitesse est négative alors que pour la partie droite elle devient positive. Le changement de signe indique clairement la présence de recirculations de part et d'autre de la contraction, dont les mouvements de fluide sont opposés à l'écoulement principal. Contrairement à la mesure dans la direction X où la présence de « zones mortes » avait pu être identifiée, la mesure de vitesse dans l'écoulement piégé est rendu possible et atteste de la présence de faibles mouvements de recirculation du fluide.

D'après la figure 4. 10. b, il est possible d'estimer les vitesses propres à l'écoulement secondaire. La vitesse associée aux mouvements de fluide piégé dans les vortex est très faible et n'excède pas la valeur de 0.1 mm.s^{-1} . La position Y pour laquelle le profil de vitesse change de signe est située à la frontière entre l'écoulement principal et l'écoulement secondaire. Pour connaître la position exacte de cette frontière, il aurait fallu procéder à la mesure de plusieurs profils $V_X(X)$ et $V_Y(Y)$, pour des positions très rapprochées de X et de Y .

IV. 3. 3. Etude de l'écoulement d'entrée durant le développement de l'instabilité volumique périodique

❖ Mesure de la composante de vitesse V_x

La figure suivante présente l'évolution temporelle de la vitesse V_x pour deux positions sur l'axe de symétrie du réservoir, telles que $X = -5$ et $X = -10$ mm. Cette expérience a été menée au *CEMEF*, à un débit réduit pour lequel l'instabilité volumique périodique est d'ores et déjà développée, comme en témoigne la déstabilisation prononcée mais périodique des isochromes.

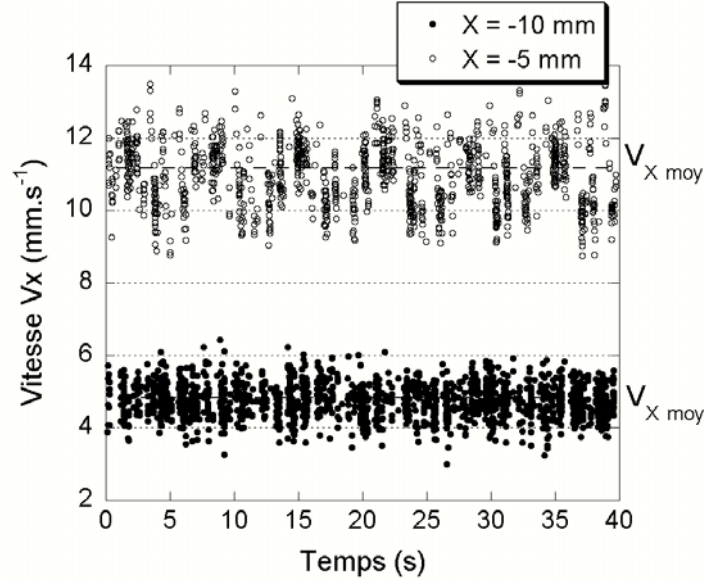


Fig. 4. 11 : Variation temporelle de la vitesse V_x pour deux positions différentes sur l'axe de symétrie et pour un taux de cisaillement apparent de 186 s^{-1} , à 180°C ($L = 20.75 \text{ mm}$, $H = 1.0 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$).

A l'aide du système de vélocimétrie laser-Doppler, la mesure d'une vitesse locale dans un écoulement est réalisée en faisant la moyenne des vitesses instantanées propres aux particules traversant le volume de mesure, dans un intervalle de temps donné. D'après Robert [7], pour un régime d'écoulement stable, cette mesure statistique suppose généralement une dispersion des vitesses instantanées autour de la vitesse moyenne de l'ordre de 5.5 à 6 % seulement.

Les signaux de vitesse présentés à la figure 4. 11 présentent des fluctuations autour de la vitesse moyenne plus importantes. Pour les positions $X = -5$ et $X = -10$ mm, nous estimons la dispersion autour de $V_{x \text{ moy}}$ à 7.6 et 9.8 %. Ces valeurs supérieures à la dispersion de mesure généralement rencontrée, semblent témoigner d'une évolution instationnaire de la vitesse dans la direction principale d'écoulement.

De plus, l'évolution du signal obtenu pour $X = -5$ mm possède visiblement une forme quasi-périodique. Cependant, nous ne nous sommes que très peu focalisés sur les variations de vitesse dans la direction principale d'écoulement. En effet, la déstabilisation des isochromes se développe principalement dans la direction Y , perpendiculairement à l'écoulement principal.

❖ Mesure simultanée des composantes V_x et V_y

Nous avons pu, au laboratoire du *LSP*, mesurer simultanément, en un point donné, les deux composantes du vecteur vitesse, V_x et V_y .

La détection du défaut volumique périodique à l'aide du dispositif expérimental utilisé au *LSP* est délicate. En effet, comme nous l'avons vu au paragraphe IV. 2, les effets de bord dans le canal d'écoulement empêchent l'observation du défaut en sortie de filière. En outre, aucune expérience

de biréfringence ne peut être mise en place et nous renseigner sur la déstabilisation de l'écoulement amont.

Néanmoins, nous avons pu utiliser les expériences menées au *CEMEF* en biréfringence d'écoulement, et ainsi estimer les conditions nécessaires au déclenchement de l'instabilité volumique périodique. D'un laboratoire à l'autre, nous nous sommes placés à la même température de 180 °C, dans le cas d'un convergent à contraction brusque possédant un rapport de contraction de 18/1.

Ainsi, le taux de cisaillement apparent critique caractéristique du déclenchement du défaut est, dans les deux cas, très voisins de 70 s⁻¹. Par conséquent, nous nous sommes placés dans une condition d'écoulement telle que le taux de cisaillement apparent soit légèrement supérieur à ce débit réduit critique. A 125 s⁻¹, nous sommes théoriquement en présence d'un régime d'écoulement pour lequel l'instabilité volumique périodique s'est développée, sans atteindre la transition vers un défaut plus chaotique.

Nous avons mesuré la variation temporelle de l'angle α , compris entre les deux composantes de vitesse et défini par la relation :

$$\alpha(t) = \arctan\left(\frac{V_y(t)}{V_x(t)}\right) \quad \text{Eq. 4. 1.}$$

La figure 4. 12 montre l'évolution temporelle de α , sur l'axe de symétrie du réservoir.

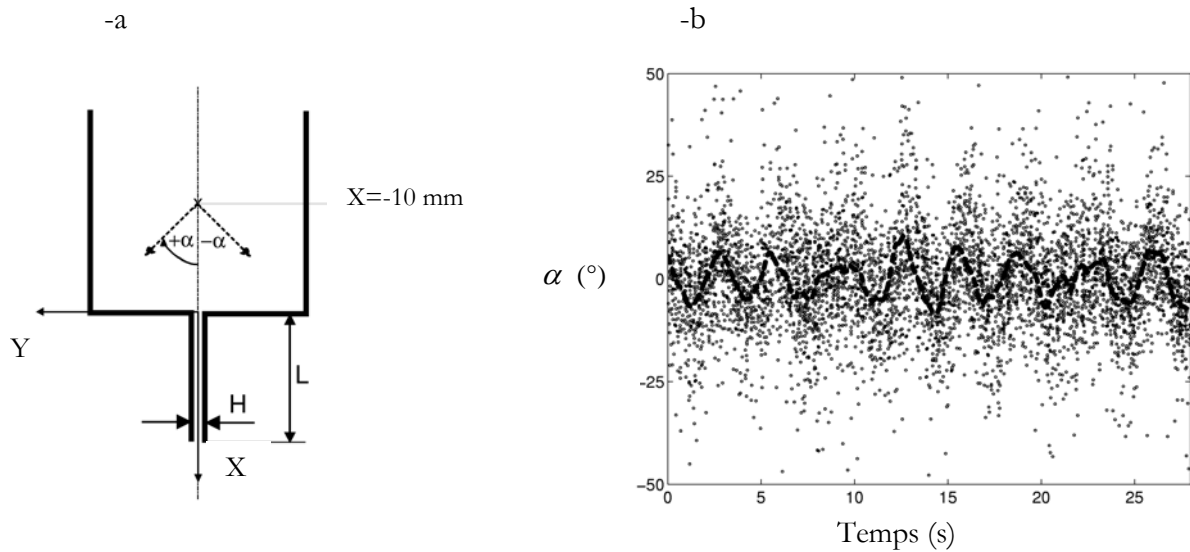


Fig. 4. 12 : Variation temporelle de l'angle α , pour une position telle que $X = -10$ mm et pour un taux de cisaillement apparent de 125 s⁻¹, à 180 °C ($L = 30$ mm, $H = 0.78$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

La ligne pointillée sur le graphique est une interpolation des valeurs calculées à partir du signal $\alpha(t)$ en utilisant une courbe spline cubique. Le bruit mesuré sur le signal est lié à la dispersion de la mesure impliquée par le système LDV ainsi qu'aux légères fluctuations du débit. En effet, le système d'extrusion utilisé au *LSP* ne possède pas de pompe à engrenage, assurant la constance du débit imposé.

Ainsi, la forme adoptée par l'interpolation n'est pas véritablement sinusoïdale. Néanmoins, il apparaît que les oscillations temporelles de l'angle α sont régulières. Autour de la valeur de zéro

degré, l'angle peut prendre des valeurs extrêmes de 20° , témoignant de la déstabilisation prononcée de l'écoulement d'entrée.

❖ Mesure de la composante de vitesse V_Y

La figure 4. 13 présente l'évolution de la vitesse V_Y en fonction du temps, pour la même position $X = -10$ mm et pour le même taux de cisaillement que sur la figure 4. 11.

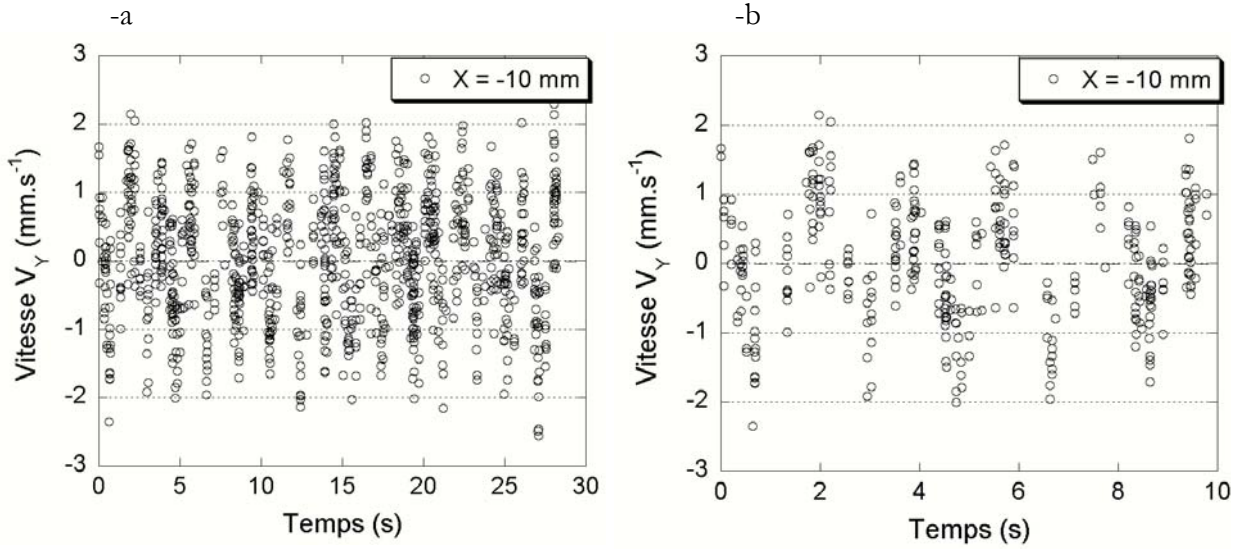


Fig. 4. 13 : Variation temporelle de la vitesse V_Y pour une position donnée et pour un taux de cisaillement apparent de 186 s^{-1} , à 180°C ($L = 20.75 \text{ mm}$, $H = 1.0 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$). La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

Alors que l'instabilité volumique périodique s'est déclenchée, les mouvements oscillatoires d'isochromes laissent supposer que l'écoulement est animé d'une translation circulaire alternative (dans un sens puis dans l'autre) autour du point de la contraction. Ainsi, comme nous venons de l'observer dans le paragraphe précédent, un « vecteur vitesse » situé sur l'axe de symétrie peut également être animé d'un mouvement oscillatoire. Il possède une composante V_X élevée dont les fluctuations relatives sont moins importantes que celles que peut présenter la composante V_Y dont la valeur reste très petite devant V_X .

C'est ainsi que l'on peut observer, sur la figure 4. 13, les oscillations périodiques de vitesse. On relève des vitesses pouvant atteindre $\pm 2 \text{ mm.s}^{-1}$, fluctuant de part et d'autre de la valeur zéro. En effet, la vitesse s'annule lorsque le fluide atteint l'axe de symétrie du réservoir. Ce phénomène est illustré par les mouvements de franges en biréfringence d'écoulement qui oscillent autour de positions extrêmes de part et d'autre de l'axe de symétrie, comme le montrent les clichés de la figure 4. 1. Le fluide se déplace alternativement d'un bord du réservoir à l'autre : les vitesses transverses V_Y deviennent alternativement positives et négatives.

Par ailleurs, nous nous sommes placés dans le réservoir à différentes abscisses X , sur l'axe de symétrie.

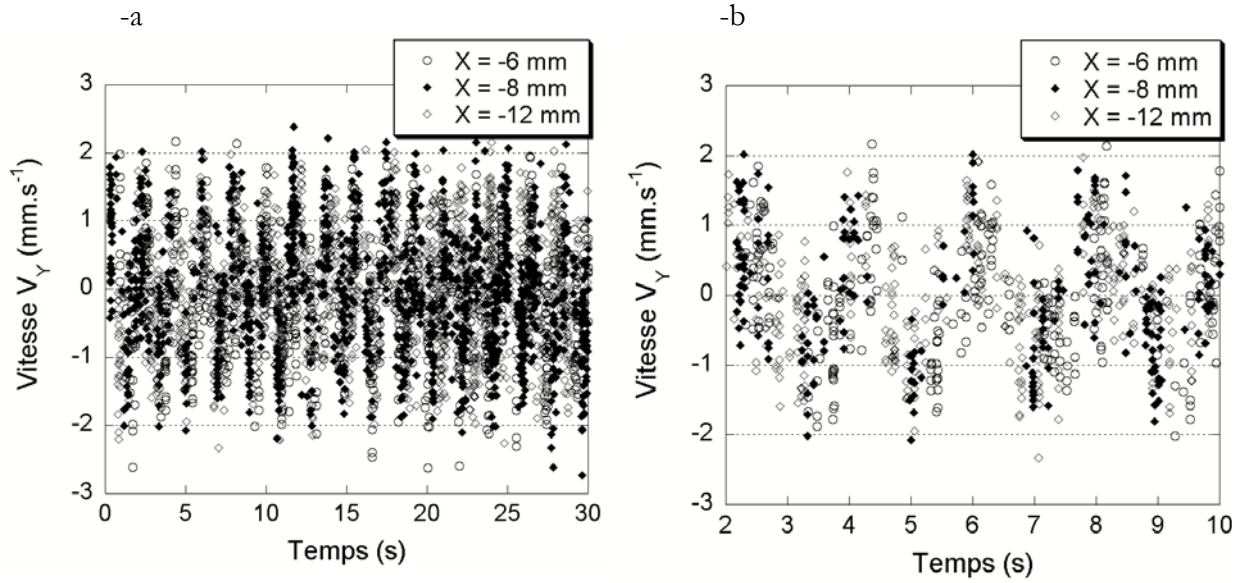


Fig. 4. 14 : Variation temporelle de la vitesse V_Y pour trois positions données et pour un taux de cisaillement apparent de 186 s^{-1} , à 180°C ($L = 20.75 \text{ mm}$, $H = 1.0 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$). La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

Sur l'axe de symétrie, pour plusieurs positions en amont de la contraction, on note que les signaux de vitesse possèdent approximativement la même périodicité. A partir de ces signaux, il ne semble pas exister de différences notables en terme d'amplitude des oscillations, d'une position à l'autre.

De même, ces mesures ont été effectuées pour différents taux de cisaillement apparents, dans le régime de développement du défaut volumique périodique.

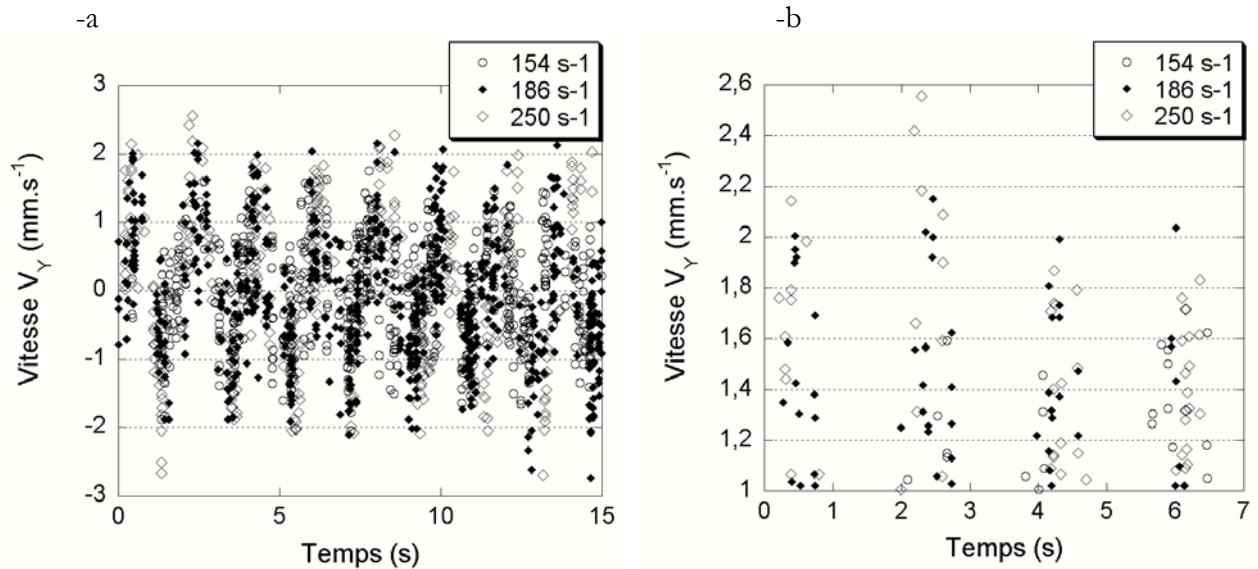


Fig. 4. 15 : Variation temporelle de la vitesse V_Y pour trois taux de cisaillement apparents et pour une abscisse $X = -8 \text{ mm}$, à 180°C ($L = 20.75 \text{ mm}$, $H = 1.0 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$). La figure (b) est un zoom de la partie supérieure de la figure (a).

Les signaux V_Y présentent, pour chaque taux de cisaillement apparent, des oscillations périodiques. D'un débit réduit à l'autre, la périodicité reste très proche, comme on peut l'observer sur la figure 4. 15. a. La figure 4. 15. b montre, à l'inverse, que l'amplitude de ces oscillations est

légèrement différente entre les différents débits d'écoulement. Plus le taux de cisaillement apparent est important et plus l'amplitude est élevée. Pour un débit réduit de 250 s^{-1} , V_Y peut atteindre des valeurs de l'ordre de 2.2 mm.s^{-1} contre 1.5 mm.s^{-1} avec un taux de cisaillement apparent de 154 s^{-1} .

En résumé, d'un débit à l'autre, la fréquence d'oscillations de vitesse ne semble pas évoluer. Par contre, la biréfringence montre que l'amplitude des déplacements de franges (et donc de la déstabilisation de l'écoulement amont) est une fonction croissante du débit. L'invariance de la période avec le débit suppose donc que la déstabilisation de l'écoulement d'entrée soit animée d'une vitesse plus importante lorsque le débit augmente. C'est précisément l'observation que nous venons de faire à partir de la figure 4. 15. b.

Par ailleurs, nous avons utilisé une transformée de Fourier pour estimer la fréquence principale de ces oscillations, en considérant que la fréquence d'échantillonnage était constante au cours de la mesure du signal. La figure 4. 16 en présente une illustration.

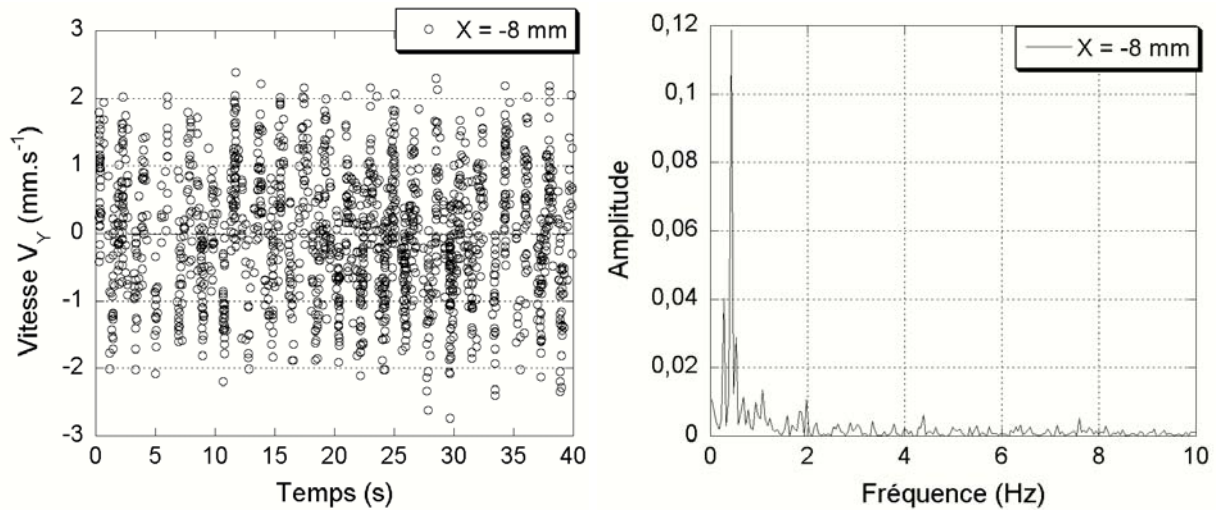


Fig. 4. 16 : Application du principe de transformée de Fourier sur un signal de vitesse V_Y pour une position donnée et pour un taux de cisaillement apparent de 186 s^{-1} , à 180°C ($L = 20.75 \text{ mm}$, $H = 1.0 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$).

Il existe une fréquence principale du signal, s'élevant à 0.43 Hz , dans ce cas précis.

Ce traitement du signal a été mis en place pour différentes abscisses X (sur l'axe de symétrie du réservoir) mais aussi pour différents taux de cisaillement apparents, dans le régime propre au défaut volumique périodique. La figure 4. 17 présente une synthèse des fréquences principales obtenues.

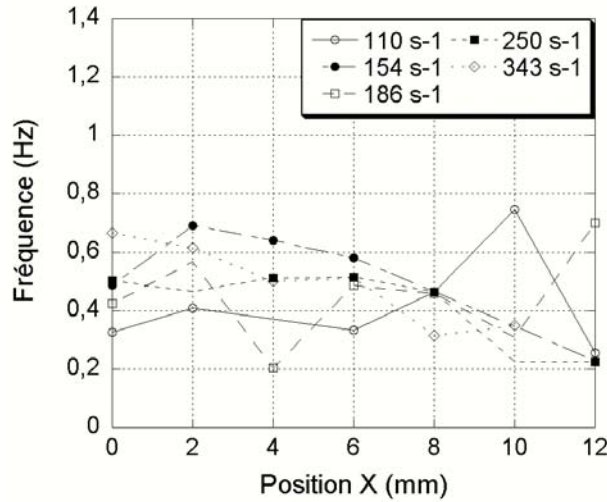


Fig. 4. 17 : Variation de la fréquence principale des signaux de vitesse V_Y obtenus pour différentes positions en amont de la contraction et sur l'axe de symétrie et pour différents taux de cisaillement apparents, à 180 °C ($L = 20.75$ mm, $H = 1.0$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

Les fréquences obtenues varient entre les valeurs de 0.2 et 0.75 Hz. Globalement, il n'est pas surprenant d'observer que la fréquence reste indépendante de la position dans le réservoir. On note également qu'elle reste indépendante du taux de cisaillement apparent. Il existe des dispersions assez importantes de ces valeurs qui s'expliquent par le fait que les signaux mesurés ne possèdent pas une régularité globale parfaite. Comme nous l'avons précédemment évoqué, le bruit mesuré sur les signaux peut s'expliquer d'une part par les incertitudes de mesure propres au système LDV et d'autre part par le fait que l'écoulement est fortement tridimensionnel. Ceci laisse supposer que l'instabilité ne se développe pas exclusivement selon le plan principal d'écoulement. Il reste hasardeux de quantifier une composante de vitesse le long d'un axe défini, puisque la déstabilisation de l'écoulement principal est assurément plus complexe à caractériser. Notons que ces mesures visent à décrire le phénomène et à apporter des conclusions avant tout qualitatives.

En moyennant les valeurs de fréquence obtenues pour différentes abscisses X , on a pu les comparer, pour chaque taux de cisaillement apparent, aux fréquences mesurées en biréfringence, à partir des déplacements d'isochromes. La figure 4. 18 fait état de cette comparaison.

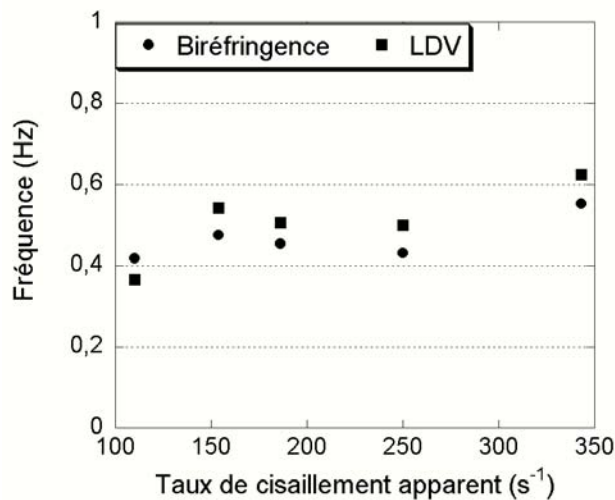


Fig. 4. 18 : Variation de la fréquence de l'instabilité mesurée par biréfringence d'écoulement et par vélocimétrie laser-Doppler, en fonction du taux de cisaillement apparent, à 180 °C ($L = 20.75$ mm, $H = 1.0$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

La figure 4. 18 nous montre qu'il existe une forte corrélation entre les oscillations de vitesses et d'isochromes, isovalues de la première différence de contrainte principale (DCP). En effet, les fréquences mesurées sont très proches et laissent supposer que les oscillations de contraintes et de vitesses sont en phase.

IV. 3. 4. Etude de la transition entre l'instabilité volumique périodique et l'instabilité chaotique

Cette partie de l'étude est particulièrement axée sur le rôle des vortex durant la phase de développement des instabilités volumiques (défaut volumique périodique et défaut chaotique).

❖ Evolution des recirculations avec le débit réduit

Les figures suivantes présentent les champs de vitesses mesurés pour un taux de cisaillement apparent de 42 et de 125 s^{-1} .

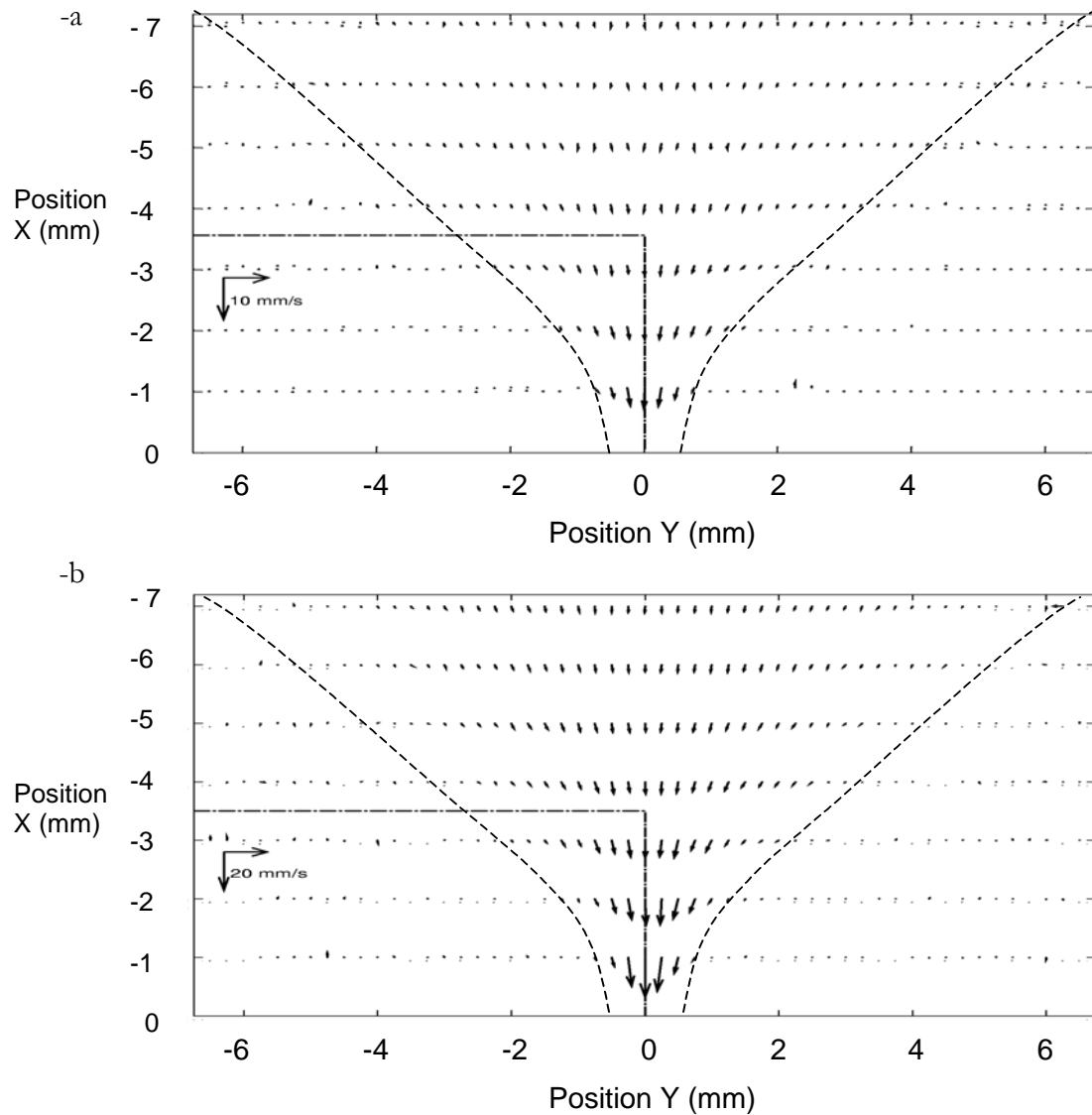


Fig. 4. 19 : Champ de vitesse mesuré dans le réservoir, en amont de la contraction, pour un taux de cisaillement apparent de 42 s^{-1} (a) et de 125 s^{-1} (b), à 180 °C ($L = 30$ mm, $H = 0.78$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

La forme du champs de vitesses dans la région d'entrée ne diffère pas d'un taux de cisaillement à l'autre. L'angle que forment les écoulements secondaires avec l'écoulement principal reste indépendant du débit et conserve une valeur de l'ordre de 100° . Ballenger et al. [20] avaient à l'inverse observé une croissance prononcée de la taille des vortex, lors de l'extrusion d'un PEBD dans une contraction brusque.

❖ Mesure de vitesses au sein des recirculations

Nous nous sommes intéressés à la stabilité des vortex pour divers taux de cisaillement apparents.

Nous avons effectué la mesure le plus près possible de la contraction. Par ailleurs, l'ordonnée Y du point de mesure a été choisie de telle sorte que l'on se situe à proximité de la frontière qui existe entre la recirculation et l'écoulement principal. En effet, la figure 4. 10. b, qui présente le profil de vitesse $V_Y(Y)$ obtenu pour une abscisse X de -0.1 mm, montre que la limite entre les deux types écoulements a lieu pour une ordonnée Y proche de -0.6 mm. La mesure a donc été effectuée pour une position aux coordonnées telles que $X = -0.1$ mm et $Y = -0.5$ mm, comme représenté sur la figure 4. 20.

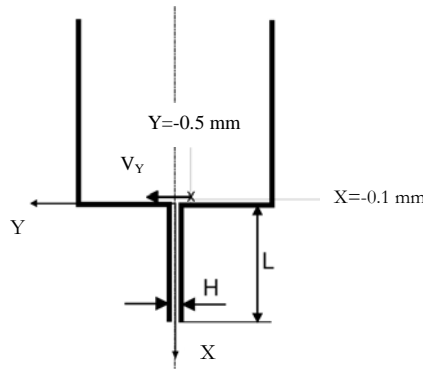


Fig. 4. 20 : Principe de la mesure effectuée au sein des recirculations.

A cette position donnée, nous avons mesuré l'évolution dans le temps de la composante de vitesse V_Y , pointant dans la direction de l'orifice. Cette mesure a été réalisée pour des taux de cisaillement apparents de 125 s^{-1} et 130 s^{-1} , comme le montre la figure 4. 21.

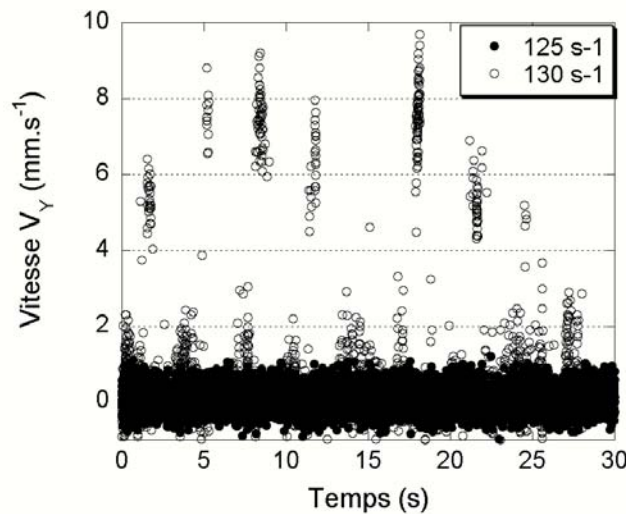


Fig. 4. 21 : Variation temporelle de la composante de vitesse V_Y , pour une position telle que $X = -0.1$ mm et $Y = -0.5$ mm et pour des taux de cisaillement apparents de 125 s^{-1} et 130 s^{-1} , à 180°C ($L = 30$ mm, $H = 0.78$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

Pour les deux débits d'écoulement, on observe de légères fluctuations de la vitesse autour de la valeur zéro, d'amplitude $\pm 1 \text{ mm.s}^{-1}$. Elles peuvent s'expliquer par le fait que l'écoulement principal au cours de sa déstabilisation tend à comprimer alternativement les zones d'écoulement secondaires.

Pour un taux de cisaillement apparent de 130 s^{-1} , on note, en plus du phénomène énoncé précédemment, d'importants pics dans le signal de vitesse dont l'amplitude peut atteindre 10 mm.s^{-1} . Ces pics de vitesse sont positifs et sont orientés du bord du réservoir vers la contraction. Ils attestent de la présence de déchargements violents de fluide provenant des vortex dans l'écoulement principal.

La vitesse maximale atteinte par ces pics de déchargement varie aléatoirement dans le temps. Sur la figure 4. 22 est représentée la variation temporelle de ces vitesses, pour un intervalle de temps restreint de 1 s.

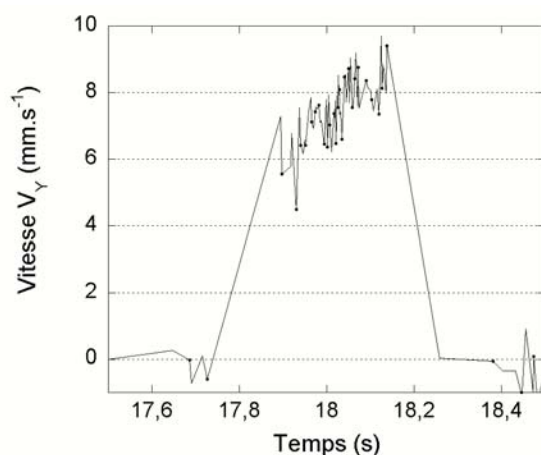


Fig. 4. 22 : Variation du signal de vitesse présenté figure 4. 21, pour un taux de cisaillement apparent de 130 s^{-1} et pour un intervalle de temps de 1 s, à 180°C ($L = 30 \text{ mm}$, $H = 0.78 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$).

La durée totale associée au saut du fluide vers la contraction est d'environ 0.5 s (durée pour laquelle la vitesse n'est plus nulle). De plus, alors que la vitesse du pic de déchargement atteint la valeur moyenne plus ou moins constante de 8 mm.s^{-1} , la durée associée n'est que de 0.25 s.

Le graphique 4. 23 présente l'évolution du signal de vitesse mesurée pour un débit réduit environ trois fois plus important.

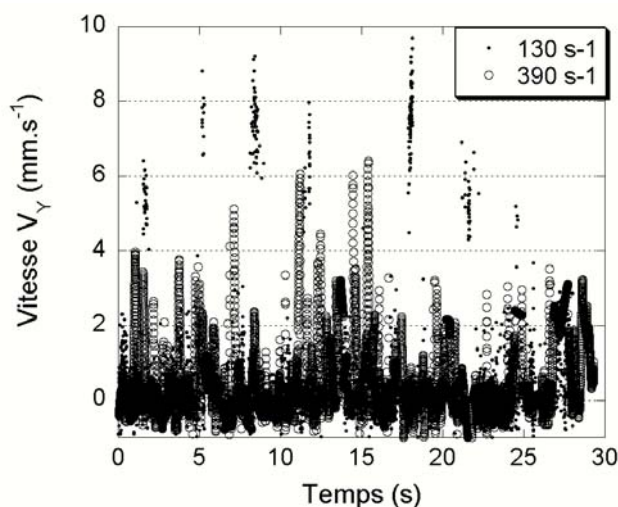


Fig. 4. 23 : Variation temporelle de la composante de vitesse V_Y , pour une position telle que $X = -0.1 \text{ mm}$ et $Y = -0.5 \text{ mm}$ et pour des taux de cisaillement apparents de 130 s^{-1} et 390 s^{-1} , à 180°C ($L = 30 \text{ mm}$, $H = 0.78 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$).

Ainsi, pour un débit d'écoulement plus élevé, on note que la fréquence d'apparition de ces pics de déchargements augmente. Néanmoins, ils apparaissent moins sévères puisque les vitesses maximales atteintes sont plus faibles que pour un taux de cisaillement apparent de 130 s^{-1} .

Pour des taux de cisaillement apparent de 130 et 390 s^{-1} , le signal de vitesse mesuré possède une résolution temporelle Δt d'environ 3.0 ms . Durant ce laps de temps, il reste très peu probable que des vitesses V plus élevées ne soient pas détectées par le système. Cette supposition est confortée par le fait que la résolution temporelle Δt est accrue avec la mesure de vitesses importantes (on a $\Delta t = \frac{\Delta d}{V}$, comme décrit au chapitre II).

Nous n'avons pas essayé de traiter et quantifier les signaux obtenus puisque leur mesure visait uniquement à comprendre qualitativement les phénomènes impliqués dans la déstabilisation de l'écoulement principal.

En définitive, nous avons démontré que le fluide issu des recirculations pouvait s'introduire, pour des débits d'écoulement relativement importants, de façon violente dans l'écoulement principal et aggraver sa déstabilisation. Avec le débit, la fréquence des ces sauts de matière augmente mais leur vitesse demeure moins élevée.

De plus, ce qu'il semble essentiel de mettre en évidence à travers cette étude est relatif à l'initiation de l'instabilité volumique périodique. En effet, pour un taux de cisaillement apparent de 125 s^{-1} , pour lequel cette dernière instabilité est d'ores et déjà développée, nous n'observons pas de déstabilisation des vortex. C'est seulement pour un taux de cisaillement apparent de 130 s^{-1} , que le phénomène de déchargement de vortex se met en place (figure 4. 21).

Ainsi, l'instabilité volumique périodique, qui naît pour des débits réduits de l'ordre de 80 s^{-1} comme énoncé précédemment, ne semble pas du tout initiée par le déchargement des recirculations. Ce dernier phénomène apparaît donc comme véritablement indépendant, uniquement susceptible de se superposer à l'instabilité volumique périodique et d'aggraver la déstabilisation de l'écoulement d'entrée. On peut alors supposer qu'il provoquerait la transition entre un défaut organisé tel que le défaut volumique périodique et un défaut plus chaotique, tributaire des déchargements aléatoires de vortex.

IV. 4. Influence de la température

IV. 4. 1. Déclenchement du défaut volumique périodique

Nous avons caractérisé l'écoulement dans la région d'entrée de la filière par des courbes d'écoulement apparentes et des clichés de biréfringence, à trois températures différentes, 180 , 190 et $200 \text{ }^{\circ}\text{C}$. La figure 4. 24 décrit les courbes d'écoulements apparentes ainsi que leur réduction par l'application du principe de superposition temps/température.

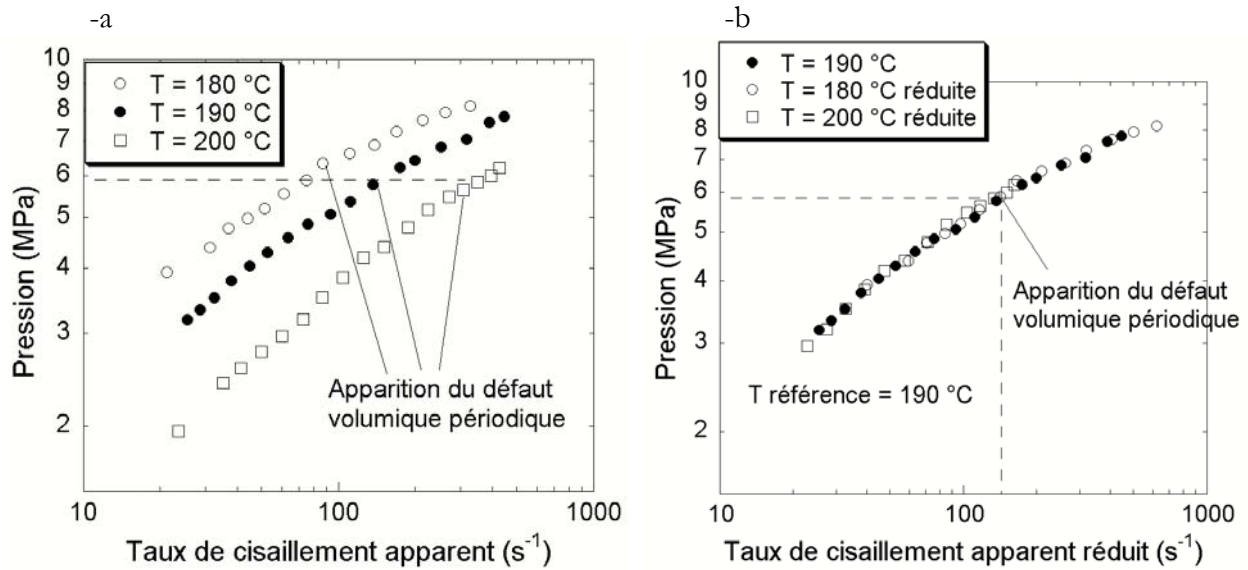


Fig. 4. 24 : Courbes d'écoulement apparentes obtenues à différentes températures (a) et courbe maîtresse à 190 °C après application du principe de superposition temps/température (b) ($L = 25\text{ mm}$, $H = 1.0\text{ mm}$ et $\alpha = 90^{\circ}$).

Comme présenté précédemment, le déclenchement du défaut volumique périodique est associé à la déstabilisation du cliché de biréfringence, en amont de la contraction.

Sachant que la température de référence est de 190 °C, nous avons utilisé des coefficients de glissement a_T de 2.30 et de 0.44 pour les températures respectives de 180 et 200 °C. Ces coefficients ont rendu la superposition en temps/température plus précise et seront utilisés au paragraphe suivant. La loi d'Arrhénius nous proposait des coefficients de 1.9 et 0.38, respectivement. Ainsi, les différences théoriques et « pratiques » des valeurs de a_T supposent un écart de température ΔT de 2 °C seulement. Il s'agit d'un écart réaliste par rapport aux incertitudes liées à l'expérience, que l'on estime à 4 °C au regard des courbes d'écoulement réalisées à différentes températures d'écoulement imposées.

On remarque que l'instabilité est repoussée à des taux de cisaillement apparents d'autant plus élevés que la température d'écoulement est importante. Les valeurs du débit réduit critique sont respectivement de 90, 150 et 300 s^{-1} pour les températures de 180, 190 et 200 °C, alors que les pressions critiques mesurées s'échelonnent seulement entre 6.3, 5.8 et 5.7 MPa. Les points des courbes d'écoulement associés au déclenchement du défaut se superposent assez bien par l'application du principe de superposition temps/température (figure 4. 24. b).

Ces observations confirment les résultats issus de la rhéométrie capillaire. Ils illustrent tout à fait la forte sensibilité de l'initiation de l'instabilité à un niveau de pression (ou contrainte) régnant en amont de la contraction.

IV. 4. 2. Fréquence du défaut volumique périodique

A partir des oscillations d'isochromes, nous avons estimé la fréquence caractéristique de l'instabilité volumique périodique pour les trois températures. Cette fréquence correspond au terme $1/\Delta t$ introduit au paragraphe IV. 1. 2 et caractéristique du « premier » régime instable.

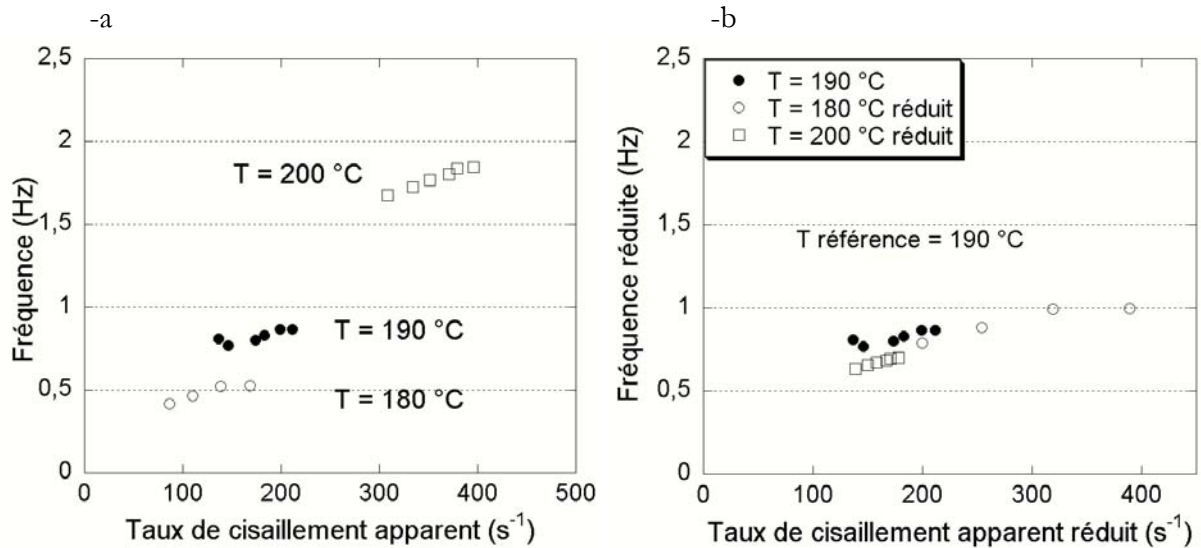


Fig. 4. 25 : Variation de la fréquence de l'instabilité en fonction du taux de cisaillement apparent, pour trois températures (a) et courbe maîtresse à $190^{\circ}C$ après application du principe de superposition temps/température (b) ($L = 25 \text{ mm}$, $H = 1.0 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^{\circ}$).

Le principe de superposition temps/température a été appliqué à une température de référence de $190^{\circ}C$, avec les mêmes coefficients de glissement a_T qu'énoncés au paragraphe précédent. La figure 4. 25. a confirme le fait que la fréquence du défaut ne varie que très peu avec le débit réduit. Par contre, elle augmente de façon conséquente avec la température (0.5, 0.8 et 1.8 Hz pour les températures respectives de 180, 190 et $200^{\circ}C$). Après application du principe de superposition temps/température, on remarque, comme en rhéométrie capillaire, que les courbes se superposent suivant une courbe maîtresse relative à la température de référence de $190^{\circ}C$. Ainsi, la fréquence propre à l'instabilité dans un large domaine de température peut être déduite simplement d'une unique expérience réalisée à une température donnée.

Les résultats observés par l'étude d'un écoulement axisymétrique en rhéométrie capillaire et d'un écoulement en filière plate sont totalement en accord. La forte thermo-dépendance de l'instabilité en terme de déclenchement mais aussi en terme de fréquence propre laisse supposer que les propriétés viscoélastiques intrinsèques du fluide sont manifestement très présentes lors de l'expression même du défaut de volume.

IV. 5. Influence du rapport de contraction

IV. 5. 1. Déclenchement du défaut volumique périodique

Nous avons utilisé trois géométries de filière différentes. En conservant le rapport L/H constant et égal à 20.75, les entrefers H associés mesurent 0.5, 1.0 et 1.5 mm. Les rapports de contraction prennent les valeurs de 36/1, 18/1 et 12/1. Rappelons que la taille du réservoir ne peut être modifiée et que, par conséquent, nous ne pouvons nous affranchir de l'influence de la dimension de l'entrefer sur l'apparition du défaut. Nous supposons, comme en rhéométrie capillaire, que l'influence du rapport de contraction est prédominante dans cette étude. Par ailleurs, le déclenchement du défaut est étudié en fonction du débit d'écoulement imposé dans le réservoir et non en fonction du taux de cisaillement apparent, calculé en aval de la contraction.

La figure 4. 26 présente les courbes d'écoulement obtenues pour le PS 1 et le PP.

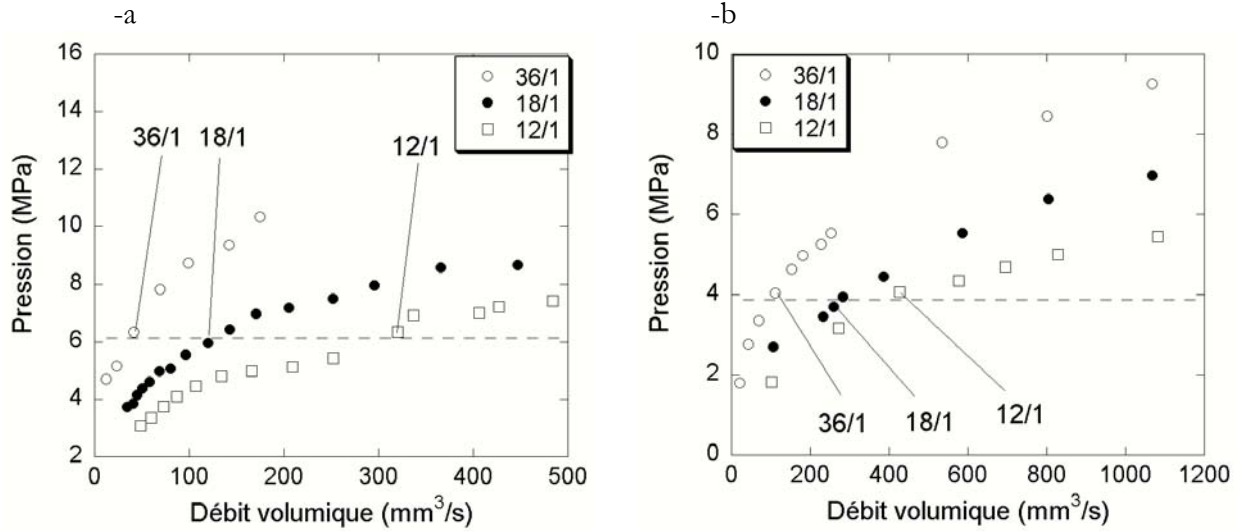


Fig. 4. 26 : Courbes d'écoulement apparentes en fonction du débit volumique imposé, pour trois rapports de contraction différents, à 180 °C pour le PS 1 (a) et à 200 °C pour le PP (b) ($L/H = 20.75$ et $\alpha = 90^\circ$).

Plus le rapport de contraction est sévère (H_{res}/H élevé) et plus l'instabilité est initiée pour de faibles débits d'écoulement. De plus, les pressions critiques de déclenchement ne varient que très peu avec la géométrie imposée.

Par ailleurs, nous avons effectué une synthèse des courbes d'écoulement issues de la rhéométrie capillaire et de la présente étude, dans le cas du PS 1. L'intérêt majeur est de pouvoir comparer d'une configuration à l'autre les conditions de déclenchement du défaut volumique périodique (défaut hélicoïdal en écoulement axisymétrique).

Dans ce cas précis, pour montrer l'influence de la sévérité de la restriction d'entrée, nous avons utilisé non pas le rapport de contraction mais le rapport des sections S_1/S_2 , avec S_1 la section du réservoir et S_2 la section du canal d'écoulement. Ces paramètres nous ont semblé plus adaptés à cette synthèse comparative. La figure 4. 27 présente les courbes d'écoulement apparentes, obtenues à 180 °C, que nous traçons en fonction de la vitesse nominale V imposée dans le réservoir. Cette vitesse est définie par la relation 4. 2.

$$V = \frac{Q}{S_1} \quad \text{Eq. 4. 2.}$$

où Q est le débit volumique imposé.

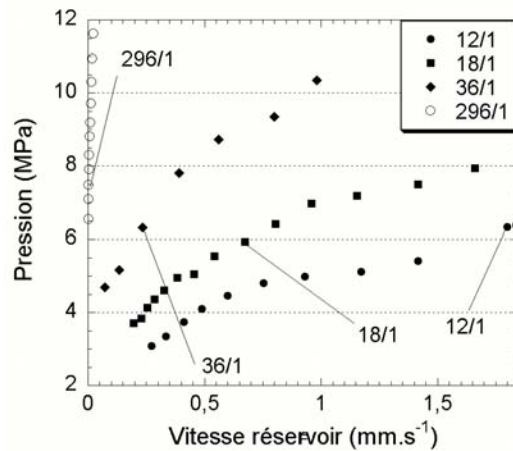


Fig. 4. 27 : Courbes d'écoulement apparentes, à 180 °C, en fonction de la vitesse nominale dans le réservoir, pour une filière axisymétrique de diamètre 0.93 mm ($L/D = 16$) et pour trois rapports de contraction différents en filière plate ($L/H = 20.75$, et $\alpha = 90^\circ$).

Sur la figure 4. 27, sont représentés en sigles vides les points issus de l'écoulement axisymétrique. En sigles pleins, apparaissent les points obtenus en filière plate. On a repéré sur le graphique le déclenchement du défaut volumique périodique associé à chaque rapport de section S_1/S_2 . La valeur 296/1 est relative au diamètre D de 0.93 mm. Les rapports de section obtenues en filière plate sont les mêmes que précédemment puisque la largeur d'écoulement est constante. Les valeurs 36/1, 18/1 et 12/1 sont respectivement associées aux entrefers H de 0.5, 1.0 et 1.5 mm.

Les rapports de longueur L/D et L/H , utilisés en rhéométrie capillaire et en filière plate, ont été pris du même ordre de grandeur. Rappelons que ce paramètre géométrique semble jouer un rôle relativement peu important quant à l'apparition du défaut. Le demi-angle de convergent considéré dans cette étude a été pris égal à 90° . En outre, nous avons appliqué le principe de superposition temps/température ($T_{\text{référence}} = 180^\circ\text{C}$) à la courbe d'écoulement apparente issue de la rhéométrie capillaire.

Cette comparaison n'est que qualitative puisque les conditions d'écoulement utilisées ne sont pas strictement identiques. Elle est censée nous donner une tendance quant à l'influence de la sévérité de restriction de section sur l'apparition du défaut. La figure 4. 27 présente des résultats qui nous sont apparus assez cohérents. En effet, on observe que plus la restriction d'entrée utilisée est sévère (ceci suppose des valeurs du rapport de section S_1/S_2 importantes), plus le défaut est initié pour de faibles vitesses d'écoulement. En d'autres termes, les sollicitations élongationnelles qui sont directement liées à la sévérité du convergent d'entrée sont évidemment déterminantes quant à l'initiation de l'instabilité.

IV. 5. 2. Fréquence du défaut volumique périodique

Les trois géométries possédant trois rapports de contraction différents ont aussi fait l'objet d'une quantification du défaut volumique périodique en terme de fréquence.

La figure 4. 28. montre l'évolution de la fréquence de l'instabilité en fonction du taux de cisaillement apparent, pour le PS 1.

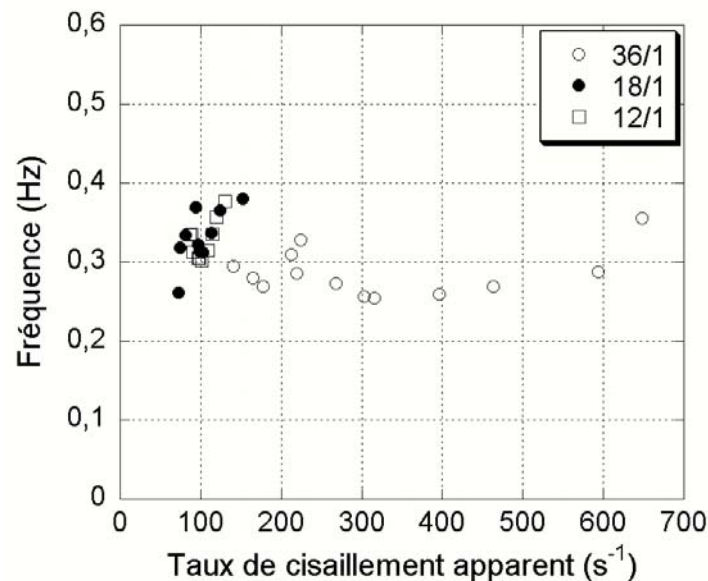


Fig. 4. 28 : Variation de la fréquence de l'instabilité pour le PS 1, en fonction du taux de cisaillement apparent, à 180 °C, pour trois rapports de contraction différents ($L/H = 20.75$, et $\alpha = 90^\circ$).

On remarque que la fréquence du défaut reste relativement indépendante du taux de cisaillement apparent mais aussi du rapport de contraction utilisé. C'est un résultat qui confirme les expériences menées en écoulement axisymétrique.

En annexe IX. 1, le cas du PP est présenté à 200°C. On note que la fréquence fluctue légèrement et de façon aléatoire avec le débit réduit, comme observé en rhéométrie capillaire. A cause de ces dispersions, il demeure difficile de dégager une tendance quant à l'influence du rapport de contraction utilisé sur la fréquence du défaut.

La figure 4. 29 présente la comparaison des fréquences, pour une température de 180°C, des deux polymères utilisés.

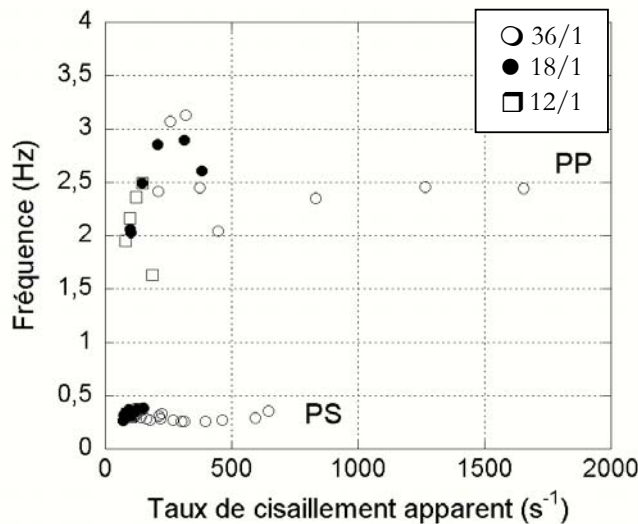


Fig. 4. 29 : Variation de la fréquence de l'instabilité pour le PS 1 et le PP, en fonction du taux de cisaillement apparent, à 180 °C, pour trois rapports de contraction différents ($L/H = 20.75$ et $\alpha = 90^\circ$).

Nous avons appliqué le principe de superposition temps/température dans le cas du PP puisque les mesures avaient été effectuées à 200 °C. La température de référence est fixée à 180 °C.

Nous observons que les niveaux de fréquence sont assez différents d'un polymère à l'autre. Pour une même température, on relève des fréquences d'oscillations d'isochromes environ six fois plus importantes pour le PP. Rappelons que la comparaison des fréquences effectuée en rhéométrie capillaire pour les deux matériaux était assez surprenante. En effet, pour un diamètre D de 0.93 mm, les deux matériaux possédaient les mêmes niveaux de fréquence alors que pour un diamètre D de 3.0, les fréquences du PS 1 étaient vingt-cinq fois plus importantes. En filière plate, nous observons le phénomène opposé. Ainsi, suivant la configuration géométrique utilisée (capillaire/filière plate) ainsi que suivant le rapport de contraction utilisé, les fréquences des deux matériaux semblent varier les uns par rapport aux autres de manière très diverse.

IV. 6. Influence de la forme du convergent d'entrée

IV. 6. 1. Déclenchement et fréquence du défaut volumique périodique avec un entrefer H de 1.0 mm

Nous avons utilisé des formes de convergents d'entrée différentes, possédant des demi-angles de 30, 45 et 90°. La géométrie de type « convergent doux » a également fait l'objet de cette étude. La figure 4. 30 présente les courbes d'écoulement apparentes obtenues à 180 °C, pour les quatre géométries.

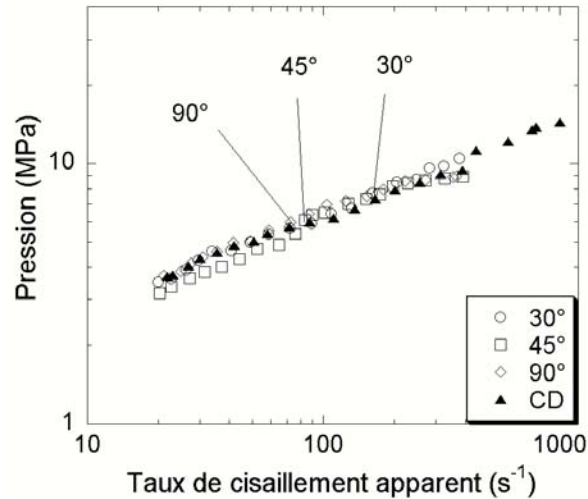


Fig. 4. 30 : Courbes d'écoulement apparentes pour différentes géométries d'entrée, à 180 °C ($L = 20.75$ mm et $H = 1.0$ mm).

La courbe associée au convergent doux est repérée par la dénomination « CD » sur la figure. Les quatre courbes se superposent assez bien ce qui montre que les effets d'entrée sur la pression totale mesurée sont peu marqués.

L'instabilité volumique périodique est repoussée à des débits d'écoulement d'autant plus importants que l'angle d'entrée est faible. Les taux de cisaillement apparents critiques prennent respectivement les valeurs de 70, 80 et 160 s^{-1} avec les demi-angles de convergence de 90, 45 et 30°. Ces observations sont en accord avec la littérature [4, 20, 41, 42].

De plus, la géométrie de type « convergent doux » est apparue au cours de cette étude particulièrement singulière. Ainsi, pour le débit maximal autorisé par le dispositif expérimental (montage sans pompe à engrenage), nous n'observons aucune déstabilisation de l'écoulement d'entrée. Les isochromes restent parfaitement symétriques, malgré la pression de 14.4 MPa qui règne en amont de la contraction.

La figure 4. 31 présente une comparaison des taux de cisaillement apparents critiques atteints pour chacune des quatre géométries étudiées.

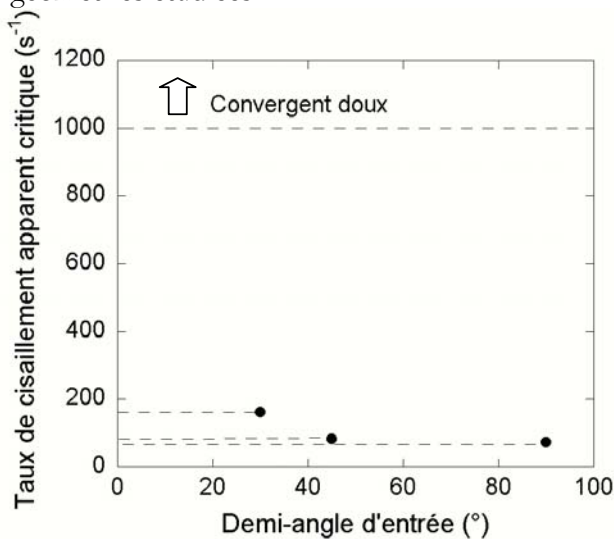


Fig. 4. 31 : Variation du taux de cisaillement apparent critique en fonction du demi-angle d'entrée, à 180 °C ($L = 20.75$ mm et $H = 1.0$ mm).

Si l'on compare les débits réduits critiques obtenus au cas le plus défavorable qui est celui de la contraction brusque, le profil de type « convergent doux » permet d'atteindre des débits nettement supérieurs. En effet, ce dernier profil permet de multiplier par au moins un facteur 10 le taux de cisaillement apparent critique lié à l'apparition du défaut.

Par ailleurs, les photos suivantes présentent les clichés de biréfringence relatifs aux convergents de demi-angle 90, 45 et 30°. Ils ont été pris au même taux de cisaillement apparent, pour lequel l'instabilité est d'ores et déjà développée dans les trois cas.

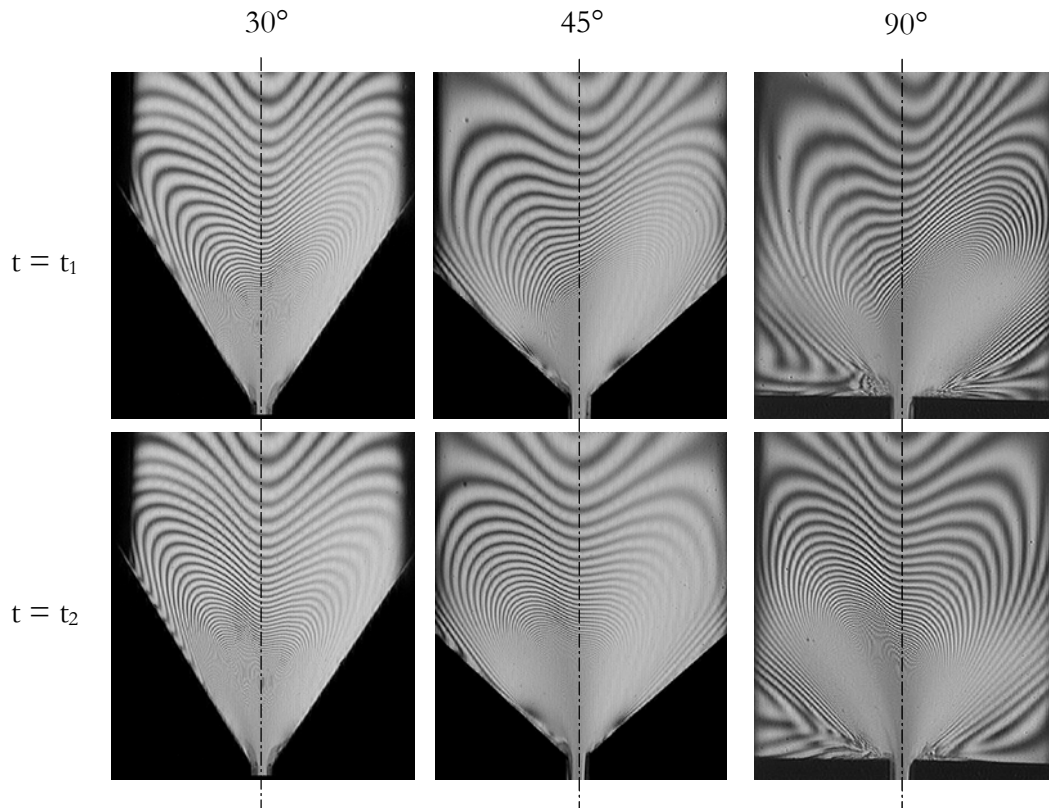


Fig. 4. 32 : Clichés de biréfringence associés aux convergents de demi-angle 30, 45 et 90°, pour un taux de cisaillement apparent de 270 s^{-1} , à 180°C ($L = 20.75 \text{ mm}$ et $H = 1.0 \text{ mm}$).

Comme sur la figure 4. 1, les temps t_1 et t_2 correspondent aux positions extrêmes adoptées par les isochromes lors de leur déplacement transverse. Les valeurs que prennent les temps t_1 et t_2 sont bien entendu différentes d'une géométrie à l'autre puisque, comme nous le verrons par la suite, la fréquence des oscillations de franges dépend de l'angle d'entrée.

Les films vidéo relatifs à cette séquence de photos peuvent être visionnés sur le site web suivant : http://eve.cma.fr/presentation_films-eve.htm.

Pour un même taux de cisaillement apparent, nous pouvons observer que plus l'angle d'entrée est important et plus l'instabilité semble développée. D'après les clichés obtenus avec un convergent de type « fond plat », les oscillations de franges présentent une amplitude nettement plus importante que pour les deux autres cas. La figure 4. 33, décrivant la variation des fréquences en fonction du taux de cisaillement apparent, confirme ces observations.

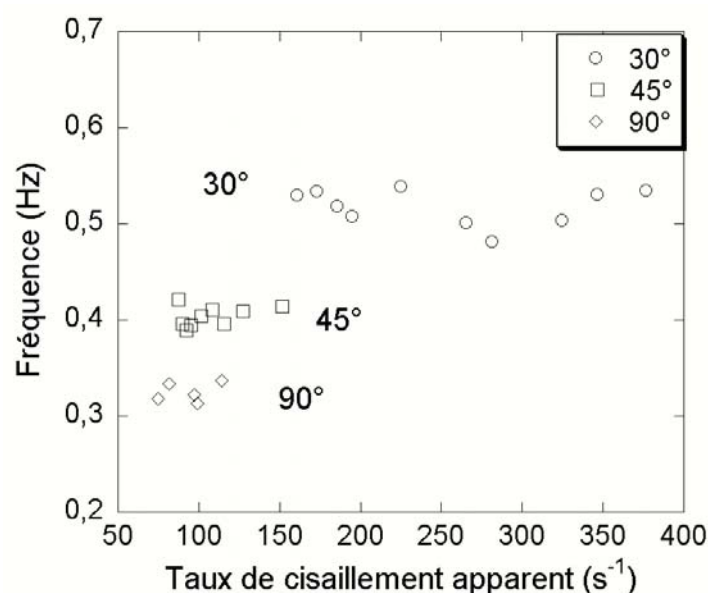


Fig. 4. 33 : Variation de la fréquence de l'instabilité en fonction du taux de cisaillement apparent, à 180 °C, pour trois angles de convergents différents ($L = 20.75$ mm et $H = 1.0$ mm).

La comparaison de l'étude menée sur les trois demi-angles d'entrée montre que la fréquence augmente conséquemment avec la diminution de l'angle d'entrée. Il s'agit d'un résultat que la rhéométrie capillaire nous avait appris, par la comparaison effectuée entre les demi-angles de convergent de 45 et 90°.

Si l'on considère la forme du convergent d'entrée, on imagine que l'amplitude de la déstabilisation de l'écoulement d'entrée est physiquement limitée par les bords d'un convergent de forme conique. En conséquence, pour le même taux de cisaillement apparent, les volumes de matière déstabilisée à chaque déplacement de l'écoulement d'entrée (que l'on a quantifié en écoulement axisymétrique par la mesure de « volumes hélicoïdaux ») sont moins importants avec un angle de convergent faible. L'extrudat en sortie de filière présente alors des distorsions volumiques plus fréquentes mais de taille moindre par rapport à un angle d'entrée plus élevé.

IV. 6. 2. Déclenchement du défaut volumique périodique avec un entrefer H de 0.5 mm

Un rapport de contraction plus sévère a été utilisé pour le cas de profils de demi-angle de convergent 30 et 45° ainsi que pour le convergent doux. Par rapport à l'étude présentée précédemment, nous avons donc divisé par deux l'entrefer H , en gardant constant le rapport L/H , égal à 20.75. En effet, l'étude précédente relative à l'influence du rapport de contraction a fortement conditionné les travaux présentés dans ce paragraphe. L'instabilité est en effet censée se développer pour des débits d'autant plus faibles que le rapport de contraction est élevé. Bien entendu, nous avons tenté de connaître les conditions de déclenchement de l'instabilité dans le cas du convergent doux.

Sur le graphique 4. 34, figurent les courbes d'écoulement apparentes relatives aux trois géométries d'entrée.

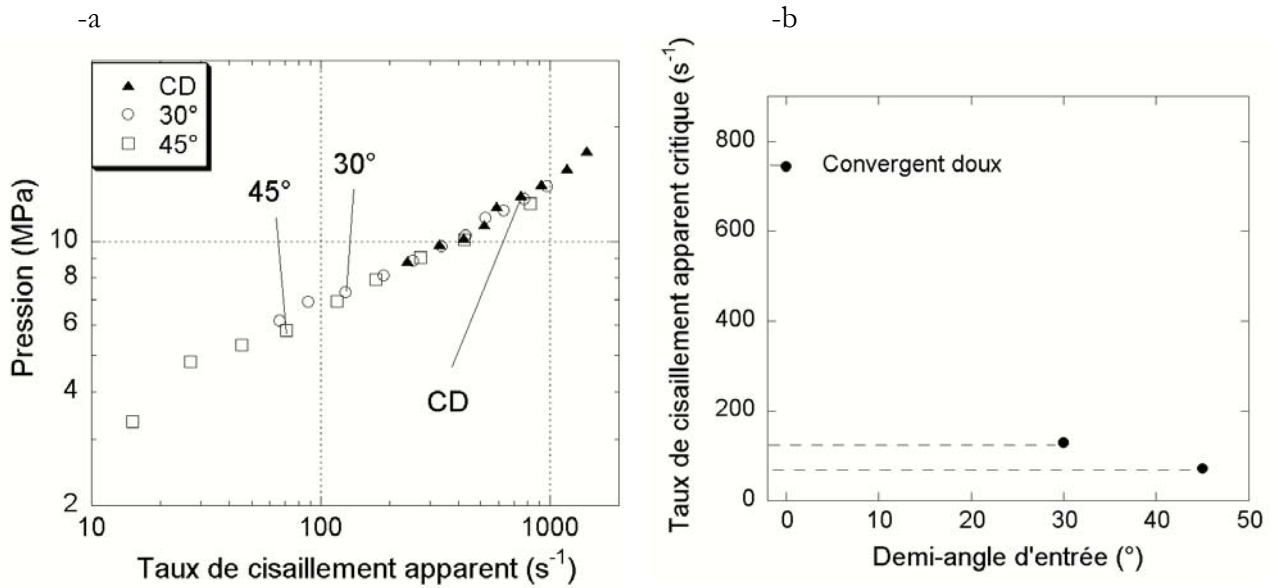


Fig. 4. 34 : Courbes d'écoulement apparentes pour différentes géométries d'entrée (a) et taux de cisaillement apparents critiques (b), à 180 °C ($L = 10.38$ mm et $H = 0.5$ mm).

Les effets d'entrée sont une fois de plus très peu marqués et les courbes d'écoulement se superposent plutôt bien.

Précisons que le profil de demi-angle de convergent 30° permet de repousser l'instabilité à des débits deux fois plus importants qu'avec un demi-angle de 45°. Par ailleurs, le dispositif expérimental dont nous disposons nous a permis d'atteindre l'instabilité volumique périodique dans le cas du convergent doux, pour un taux de cisaillement critique de $744 s^{-1}$. Il existe un facteur sept entre les géométries plus classiques et ce dernier profil.

Le tableau 4. 1 résume les taux de cisaillement apparents ainsi que les débits volumiques critiques obtenus pour les géométries d'écoulement décrites aux paragraphes IV. 5. 1, IV. 6. 1 et IV. 6. 2.

α (°)	90			45		30		CD	
H (mm)	0.5	1.0	1.5	0.5	1.0	0.5	1.0	0.5	1.0
$\dot{\gamma}_{app\ critique}$ (s^{-1})	101	73	86	71	84	128	161	744	>1000
$Q_{critique}$ ($mm^3.s^{-1}$)	42	121	324	30	141	54	271	313	>1683

Tab. 4. 1 : Taux de cisaillement apparents et les débits volumiques critiques obtenus pour quatre convergents d'entrée et deux entrefers différents (trois entrefers H pour la contraction brusque), à 180 °C, pour le PS 1 ($L/H = 20.75$).

Avec le convergent doux, pour un entrefer H de 1.0 mm, la valeur des débits critiques correspond en fait à la valeur maximale atteinte par le dispositif, sans initier l'instabilité.

IV. 6. 3. Déclenchement du défaut volumique périodique dans le cas du polypropylène

La géométrie du convergent d'entrée a également fortement conditionné le déclenchement du défaut volumique périodique, lors de l'extrusion du PP (figure 4. 35).

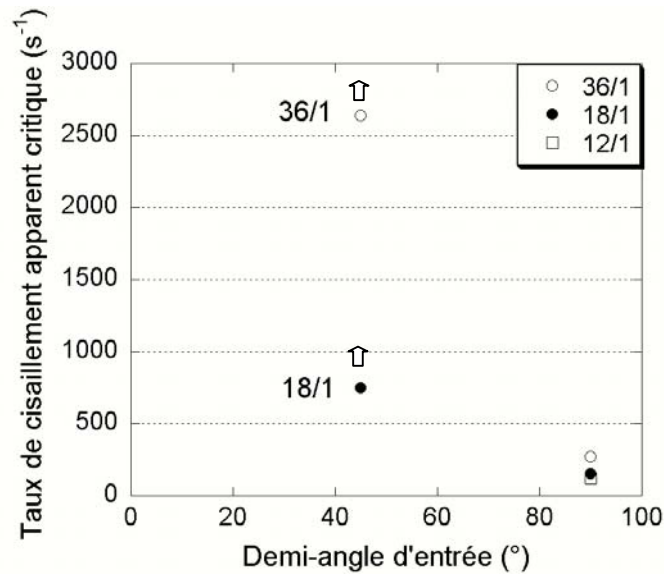


Fig. 4. 35 : Variation du taux de cisaillement apparent critique en fonction du demi-angle d'entrée, pour différents rapports de contraction, à 200 °C ($L/H = 20.75$).

Les deux flèches associées aux points représentant le demi-angle de 45° signifient que le déclenchement du défaut n'a pas eu lieu. Il s'agit en effet de la valeur maximale du taux de cisaillement apparent que le dispositif expérimental nous a autorisé à atteindre (au même titre que pour le PS 1), sans qu'aucune déstabilisation de l'écoulement d'entrée n'apparaisse.

Dans le cas du rapport de contraction de 36/1, l'utilisation d'un demi-angle de 45° permet donc d'atteindre des débits qui sont au moins neuf fois plus importants qu'avec une contraction brusque. L'instabilité est ainsi repoussée de façon beaucoup plus conséquente qu'avec le PS 1.

IV. 7. Conclusion

Les expériences menées en biréfringence d'écoulement et en vélocimétrie laser-Doppler ont montré que l'instabilité de volume était initiée dans la région d'entrée de la filière.

En premier lieu, on assiste à l'initiation d'un défaut de volume organisé, périodique, caractérisé par des oscillations régulières d'isochromes dans une direction perpendiculaire à l'écoulement principal. Avec le débit, on constate que la fréquence demeure constante alors que l'amplitude des oscillations augmente. Ces oscillations d'isochromes s'accompagnent d'une perte de symétrie périodique du champ de vitesse, notamment dans la direction transverse à l'écoulement.

Pour des débits d'écoulement plus importants, on note une évolution de ce régime vers une déstabilisation plus chaotique et moins organisée. Nous avons noté qu'elle s'accompagne de la déstabilisation des vortex qui se déchargent violemment au sein de l'écoulement principal. Ce dernier phénomène n'explique cependant pas l'initiation de l'instabilité volumique périodique dont le développement a lieu, dans un premier temps, sans que les recirculations ne se déchargent dans l'écoulement principal.

De plus, le défaut reste très dépendant de la température. En effet, le taux de cisaillement apparent critique et la fréquence obéissent au principe de superposition temps/température. Les propriétés viscoélastiques du fluide extrudé semblent par conséquent être impliquées dans l'initiation et le développement de l'instabilité.

Enfin, les sollicitations élongationnelles que subit le fluide à l'approche de la contraction apparaissent comme déterminantes quant à l'initiation du défaut. En effet, plus la forme du convergent ainsi que le rapport de contraction semblent sévères et plus le défaut se déclenche pour de faibles débits d'écoulement. Le chapitre V a pour objet de détailler les caractéristiques de l'écoulement principal en terme de contraintes, vitesses de déformation ou encore déformation élongationnelles, à l'apparition de l'instabilité.

CHAPITRE V

RECHERCHE DES CRITERES DE DECLenchement DU DEFAUT VOLUMIQUE PERIODIQUE ET INTERPRETATIONS

CHAPITRE V

RECHERCHE DES CRITERES DE DECLENCHEMENT DU DEFAUT VOLUMIQUE PERIODIQUE ET INTERPRETATIONS

Résumé

Les résultats du chapitre précédent ont confirmé le fait que l'instabilité volumique était initiée dans la région d'entrée de la filière. Ce dernier chapitre s'articule autour de quatre parties relativement indépendantes dont l'objectif commun est de caractériser l'initiation de l'instabilité. Ainsi, les deux premières parties s'appuient sur des mesures expérimentales menées en biréfringence d'écoulement et en vélocimétrie laser-Doppler, respectivement. Dans les deux cas, on s'est attaché, pour le PS 1 et pour le PP, à quantifier les sollicitations élongationnelles que subit le fluide à son approche de la contraction, le long de l'axe de symétrie du réservoir. La troisième partie traite de simulation numérique par éléments finis de l'écoulement du polymère (PS 1) dans les différentes géométries de filière plate, en particulier dans les conditions de déclenchement du défaut. Enfin, la dernière partie présente des résultats surprenants, obtenus en écoulement axisymétrique, avec le PS 2. En définitive, ces derniers montrent que l'instabilité hélicoïdale (volumique périodique en filière plate) est un phénomène complexe et que les conditions d'écoulement nécessaires à son déclenchement demeurent difficiles à prévoir et à interpréter.

Table des Matières

V. 1. Etude du déclenchement de l'instabilité volumique périodique par biréfringence d'écoulement.....	129
V. 1. 1. Influence de la géométrie du convergent	129
V. 1. 2. Influence du rapport de contraction (avec le PP)	132
V. 2. Etude du déclenchement de l'instabilité volumique périodique par vélocimétrie laser-Doppler.....	135
V. 2. 1. Principe de calcul des taux de déformation et des déformations, selon la direction d'écoulement	135
V. 2. 2. Influence du rapport de contraction et de la forme du convergent sur $\dot{\epsilon}_{xx}$	140
V. 2. 3. Conditions d'initiation du défaut pour le PS 1	143
V. 2. 4. Comparaison des comportements du PS 1 et du PP.....	147
V. 3. Etude de l'écoulement en géométrie plane par simulation numérique en éléments finis	149
V. 3. 1. Description du code de calcul et de la loi de comportement utilisés	149

V. 3. 2. Identification des paramètres de la loi de comportement.....	152
V. 3. 3. Géométrie de maillages et conditions limites utilisées	155
V. 3. 4. Simulation numérique obtenue pour des conditions d'écoulement stables	156
V. 3. 5. Simulation numérique obtenue pour des conditions d'écoulement critiques	164
V. 3. 6. Discussion.....	165
V. 4. Comportement singulier du PS 2 en écoulement axisymétrique	169
V. 4. 1. Description du défaut observé.....	169
V. 4. 2. Courbes d'écoulement apparentes, pour différents rapports L/D	170
V. 4. 3. Etude du signal de pression dans la zone oscillante	172
V. 4. 4. Influence de la température.....	175
V. 4. 5. Comparaison des études menées avec les filières de demi-angle de 45 et 90°	177

Les paragraphes V. 1 et V. 2 présentent les critères liés à l'initiation du défaut volumique périodique décrit au chapitre IV. Il s'agit de grandeurs issues exclusivement des données expérimentales que nous ont fournies la biréfringence d'écoulement et la vélocimétrie laser-Doppler. A travers l'étude présentée, nous n'avons pas estimé de contraintes de cisaillement, nombre de Weissenberg ou encore de contraintes et taux de déformation élongationnels par l'analyse de Cogswell [50]. En effet, contrairement à l'étude menée en rhéométrie capillaire, nous avons eu accès à la mesure directe de contraintes et vitesses relatives à l'écoulement dans la région d'entrée de la filière.

V. 1. Etude du déclenchement de l'instabilité volumique périodique par biréfringence d'écoulement

Cette partie de l'étude a consisté à caractériser le déclenchement de l'instabilité volumique périodique par biréfringence d'écoulement. Rappelons que, sur l'axe de symétrie du réservoir, on peut estimer la première différence de contraintes principales par la relation 5. 1, à partir d'un cliché de biréfringence :

$$|\sigma_I - \sigma_{II}| = |\sigma_{xx} - \sigma_{yy}| = \frac{k\lambda}{CW} \quad \text{Eq. 5. 1.}$$

avec σ_I et σ_{II} les contraintes principales, σ_{xx} et σ_{yy} les contraintes normales (sachant que X est la direction d'écoulement), k l'ordre de l'isochrome considérée, λ la longueur d'onde de la source monochromatique, C le coefficient de Brewster et W la largeur de la filière.

Le tableau 5.1 résume les différentes valeurs des paramètres utilisés. Les coefficients de Brewster C sont issus de la littérature [58, 59].

Paramètres	λ (nm)	C ($10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{N}^{-1}$)	W (mm)
Valeurs	589	4 (PS 180 °C) 0.8 (PP 200 °C)	10.1

Tab. 5. 1 : Paramètres utilisés en biréfringence d'écoulement.

V. 1. 1. Influence de la géométrie du convergent

Comme en témoigne la valeur du coefficient optique C , le polystyrène est un matériau très biréfringent. Par conséquent, pour des débits réduits de l'ordre de 40 s^{-1} seulement, le nombre d'isochromes n'est déjà plus quantifiable, avec le matériel dont nous disposons. En effet, les franges deviennent trop nombreuses pour être identifiées, notamment près de la contraction et des singularités géométriques.

Ainsi, à l'apparition de l'instabilité, nous n'avons pas été en mesure de dénombrer les isochromes, en particulier en amont de la contraction, et d'estimer une première différence de contraintes normales critique. Les taux de cisaillement apparents critiques associés aux géométries d'écoulement étudiées sont au minimum de l'ordre de 70 s^{-1} .

Nous avons néanmoins tenté de caractériser quantitativement l'écoulement d'entrée propre aux quatre géométries utilisées, pour un faible débit réduit. Les figures suivantes présentent les clichés de biréfringence relatifs aux quatre convergents, pour un taux de cisaillement apparent de 20 s^{-1} .

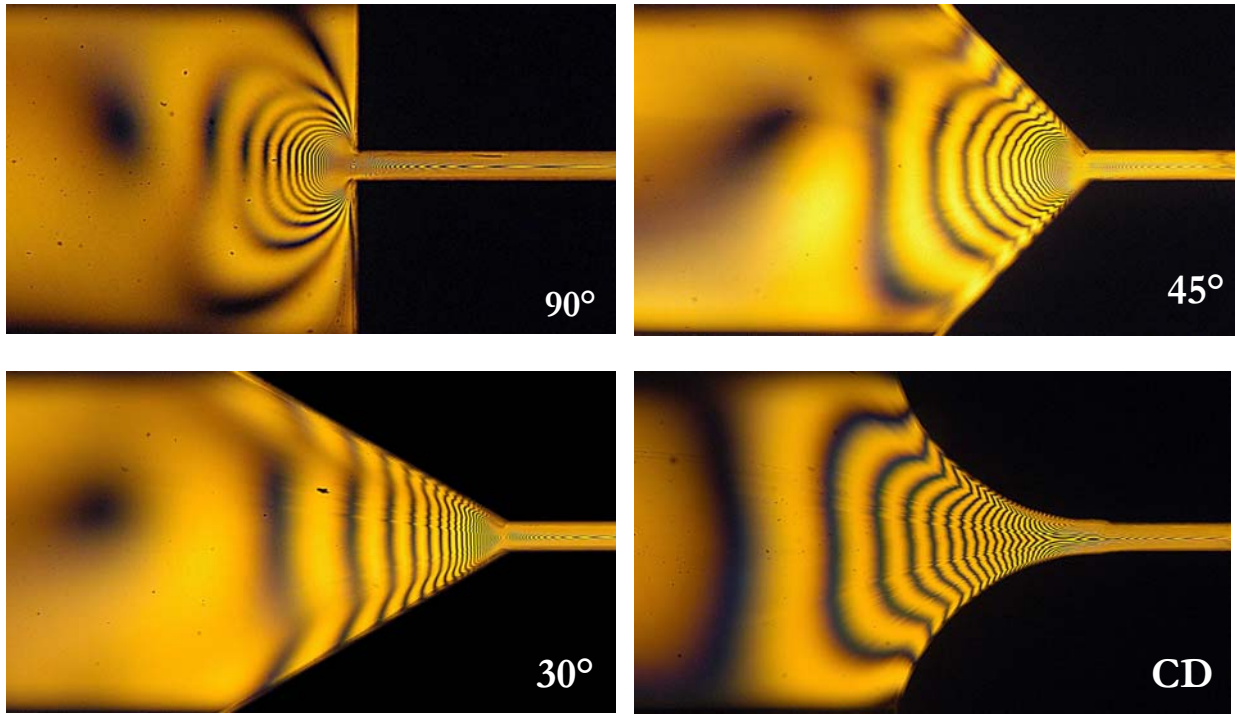


Fig. 5. 1 : Clichés de biréfringence d'écoulement en régime stable, à $\dot{\gamma}_{app} = 20 \text{ s}^{-1}$, pour les quatre géométries de convergents, à 180°C ($L = 20.75 \text{ mm}$ et $H = 1.0 \text{ mm}$).

Les clichés montrent que la concentration de franges est d'autant plus élevée que le demi-angle de convergent est important. En effet, les convergents de demi-angle 30° et de type « convergent doux » présentent nettement moins d'isochromes à la contraction que les convergents de demi-angle 45° et 90° .

On a pu quantifier de tels clichés et calculer, le long de l'axe de symétrie du réservoir, la première différence de contraintes normales.

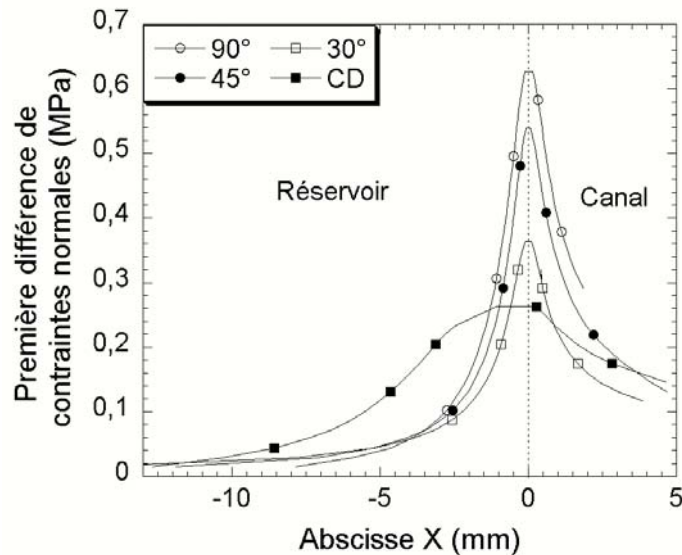


Fig. 5. 2 : Variation de la première différence de contraintes normales le long de l'axe de symétrie du réservoir, pour les quatre géométries de convergents, à 180°C ($\dot{\gamma}_{app} = 20 \text{ s}^{-1}$, $L = 20.75 \text{ mm}$ et $H = 1.0 \text{ mm}$).

La première différence de contraintes normales (DCN) augmente depuis la région amont du réservoir pour atteindre un maximum, à l'approche de la contraction. Dans le canal d'écoulement,

les quatre géométries présentent une relaxation des contraintes avec une décroissance progressive de la première différence de contraintes normales.

Avec le convergent de type « fond plat », la DCN atteint une valeur maximale de 0.63 MPa à la contraction. Si l'on utilise un angle d'entrée plus faible, la valeur maximale de la DCN diminue. Les valeurs sont alors respectivement de 0.54 et 0.36 MPa pour les demi-angles d'entrée de 45 et 30°. Le convergent doux possède un comportement assez singulier puisqu'il présente une valeur maximale de la DCN de 0.26 MPa seulement. Il s'agit d'une valeur plus de deux fois plus faible que dans le cas des convergents de demi-angle 45 et 90°. Notons que cette valeur maximale est atteinte pour une position sur l'axe située à environ 1 mm en amont du canal.

De plus, d'après la forme des courbes en amont de la contraction, on remarque qu'avec l'utilisation d'un tel convergent, l'augmentation de la DCN reste nettement plus progressive que dans les trois autres cas. Ainsi, on note une anticipation de la contraction pour des positions X très en amont de l'orifice. Avec un demi-angle de 90°, l'augmentation de la DCN s'opère pour des positions plus proches de la contraction et de façon plus rapide si l'on en juge par la pente élevée de la courbe pour des positions X comprises entre -3 et 0 mm.

Avec le PP, on observe également, sur la figure 5. 3, que l'utilisation d'un convergent de demi-angle 45° permet de réduire légèrement le niveau de contrainte à la contraction, par rapport au cas d'une contraction brusque.

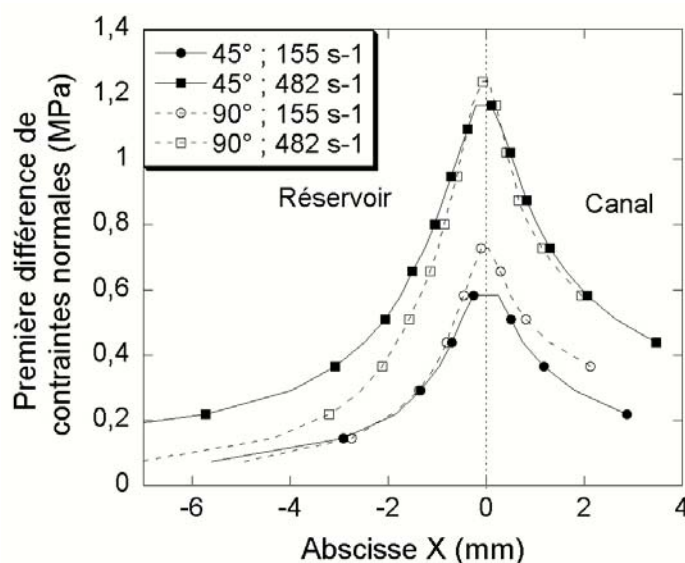


Fig. 5. 3 : Variation de la première différence de contraintes normales le long de l'axe de symétrie du réservoir, pour le PP, avec deux géométries de convergents ($\alpha = 90^\circ$ et $\alpha = 45^\circ$), à 200 °C ($\dot{\gamma}_{app} = 155 \text{ s}^{-1}$ et $\dot{\gamma}_{app} = 482 \text{ s}^{-1}$, $L = 20.75 \text{ mm}$ et $H = 1.0 \text{ mm}$).

Par conséquent, ces résultats montrent clairement que la forme du convergent d'entrée joue un rôle important dans l'établissement du champ de contraintes, en amont de la contraction notamment. L'utilisation d'une forme d'entrée assez peu sévère (convergent doux ou demi-angle de convergent de 30°) permet de réduire conséquemment les contraintes élongationnelles que subit le fluide à son approche de l'orifice. Dans ces conditions d'écoulement, on peut ainsi expliquer qualitativement le fait que l'instabilité volumique périodique puisse être repoussée à des débits d'écoulements très supérieurs.

V. 1. 2. Influence du rapport de contraction (avec le PP)

Dans le cas du polypropylène, nous avons montré que l'instabilité volumique périodique n'était déclenchée que pour des convergents de type « fond plat ». Le dispositif expérimental ne nous a pas permis d'atteindre la déstabilisation de l'écoulement principal avec un convergent de demi-angle 45° , même avec l'utilisation d'un rapport de contraction de 36/1.

La figure 5. 4 présente, pour un même débit d'écoulement imposé, les clichés de biréfringence associés à trois rapports de contraction différents.

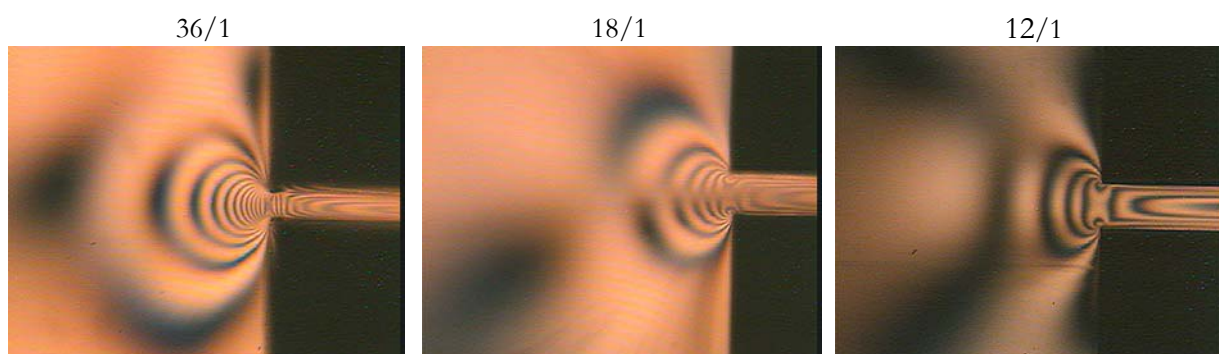


Fig. 5. 4 : Clichés de biréfringence d'écoulement du PP, avec $Q \approx 112 \text{ mm}^3 \text{ s}^{-1}$, pour trois rapports de contraction différents, à 200°C ($L/H = 20.75$ et $\alpha = 90^\circ$).

Les taux de cisailement apparents correspondant au débit volumique présenté sont respectivement de 271, 59 et 30 s^{-1} pour les rapports de contraction de 36/1, 18/1 et 12/1.

D'après les clichés, on peut calculer la variation de la DCN, le long de l'axe de symétrie, comme présenté sur la figure 5. 5.

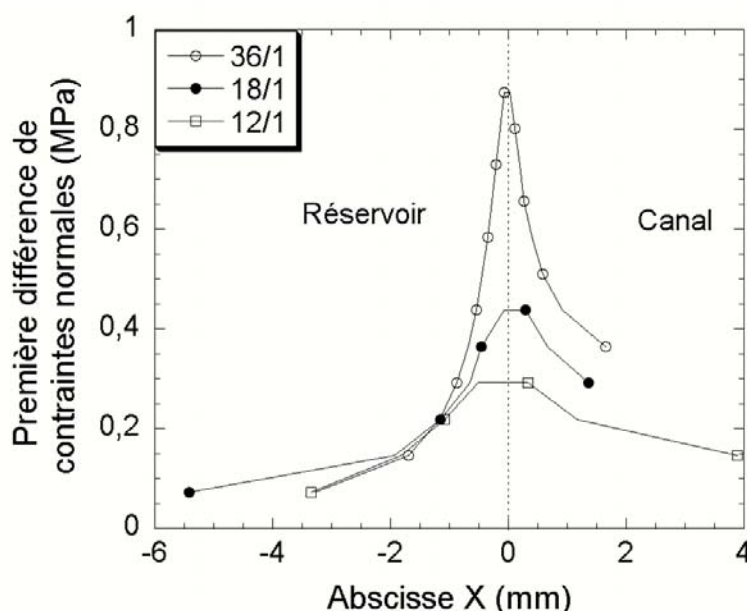


Fig. 5. 5 : Variation de la première différence de contraintes normales le long de l'axe de symétrie du réservoir, pour le PP, avec trois rapports de contraction, à 200°C ($L/H = 20.75$, $\alpha = 90^\circ$ et $Q \approx 112 \text{ mm}^3 \text{ s}^{-1}$).

On note que la pente des courbes présentées est d'autant plus élevée que le rapport de contraction est important, aussi bien en amont qu'en aval de la contraction. De plus, à même

débit d'écoulement, on remarque que le niveau de contrainte maximale atteint à la contraction est d'autant plus important que le rapport de contraction est élevé.

Lorsque l'étude est portée sur l'influence des rapports de contraction, nous avons raisonné en terme de débit d'écoulement Q plutôt qu'en terme de taux de cisaillement apparent $\dot{\gamma}_{app}$. A titre indicatif, le graphique 5. 6 présente la caractérisation des clichés de biréfringence, à même taux de cisaillement apparent, pour les trois rapports de contraction.

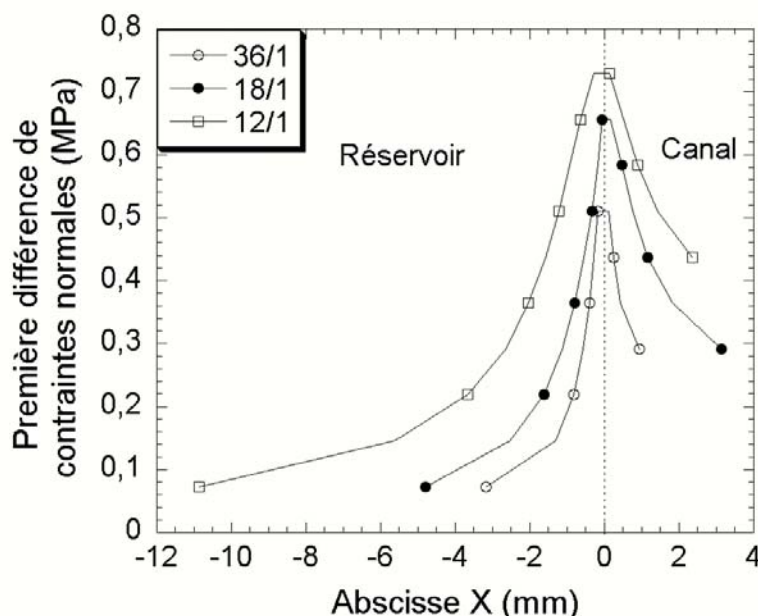


Fig. 5. 6 : Variation de la première différence de contraintes normales le long de l'axe de symétrie du réservoir, pour le PP, avec trois rapports de contraction, à 200 °C ($L/H=20.75$, $\alpha=90^\circ$ et $\dot{\gamma}_{app} \approx 118 \text{ s}^{-1}$).

La valeur du taux de cisaillement apparent utilisé correspond à des débits volumiques Q de 50, 199 et $447 \text{ mm}^3 \text{ s}^{-1}$, pour les rapports de contraction de 36/1, 18/1 et 12/1, respectivement.

On remarque qu'à même taux de cisaillement apparent, les valeurs maximales de la DCN sont d'autant moins élevées que le rapport de contraction est sévère. Ainsi, la sévérité du rapport de contraction, ainsi que les niveaux de contraintes qu'elle suppose, semblent être décrits de façon plus « logique » en fonction du débit d'écoulement plutôt que du débit réduit.

Par ailleurs, nous avons pu caractériser les conditions de déclenchement du défaut volumique périodique. En effet, même si les débits d'écoulement critiques sont plus importants que pour le PS 1, le polypropylène reste assez peu biréfringent par rapport au polystyrène. Les isochromes sont ainsi aisément dénombrables.

La figure 5. 7 présente les clichés de biréfringence associés à l'apparition du défaut, pour trois rapports de contraction différents.

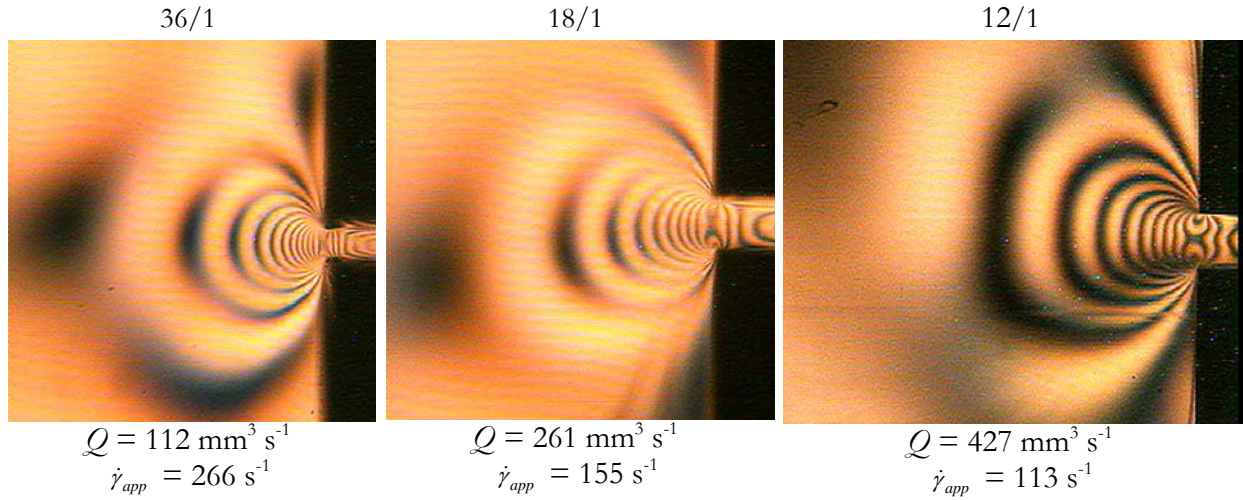


Fig. 5. 7 : Clichés de biréfringence au déclenchement de l'instabilité volumique périodique pour le PP, avec trois rapports de contraction, à 200 °C ($L/H= 20.75$ et $\alpha = 90^\circ$).

A partir des clichés précédents, nous avons quantifié, le long de l'axe de symétrie, la première différence de contraintes normales critique relative aux trois débits d'écoulements Q critiques.

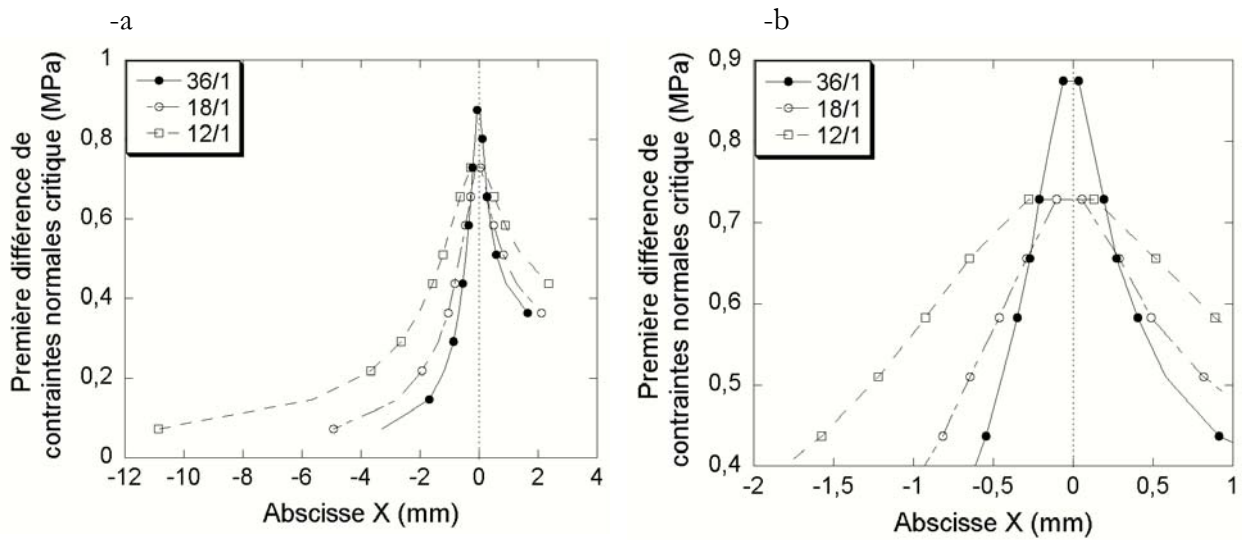


Fig. 5. 8 : Variation de la première différence de contraintes normales dans les conditions critiques de déclenchement du défaut, le long de l'axe de symétrie du réservoir, pour le PP, avec trois rapports de contraction, à 200 °C ($L/H= 20.75$ et $\alpha = 90^\circ$). La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

D'après les figures 5. 8, on note que, d'une géométrie à l'autre, l'apparition de l'instabilité a lieu pour approximativement la même différence de contraintes normales à la contraction. Les valeurs maximales critiques s'échelonnent entre 0.73 et 0.87 MPa. Alors que les débits critiques Q sont très différents d'une géométrie à l'autre, l'apparition du défaut volumique périodique semble se mettre en place pour un même niveau de contrainte élongationnelle, atteint à la contraction. Il s'agit, dans ce cas, d'un critère particulièrement pertinent capable de caractériser un état de contrainte tel que l'écoulement d'entrée se déstabilise.

Nous avons par ailleurs comparé la variation des DCN obtenues dans les conditions critiques présentées ci-dessus à celles obtenues avec un convergent de demi-angle 45° , dans les conditions d'écoulement maximales autorisées par le dispositif expérimental.

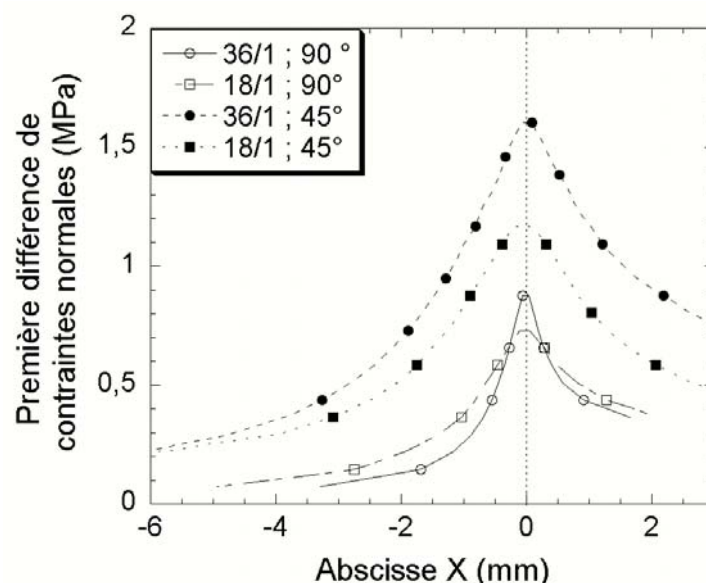


Fig. 5. 9 : Variation de la première différence de contraintes normales critique, le long de l'axe de symétrie du réservoir, pour le PP, avec deux rapports de contraction et deux angles de convergent différents, à 200 °C ($L/H= 20.75$). Le débit Q associé aux convergents de demi-angle 45 ° est de 817 mm³ s⁻¹. Le débit Q associé aux convergents de demi-angle 90 ° est le débit critique.

Grâce à la figure 5. 9, on peut comparer les valeurs de la DCN à la contraction, d'une géométrie de convergent à l'autre. Ainsi, dans le cas du convergent dièdre de demi-angle 45°, la DCN atteint une valeur maximale de 1.6 et 1.17 MPa pour des rapports de contraction respectifs de 36/1 et 18/1. Aucune déstabilisation de l'écoulement amont n'a cependant été observée dans ces conditions d'écoulement. Il apparaît donc que les niveaux de contraintes atteints à la contraction sont nettement supérieurs à ceux obtenus avec une contraction brusque, dans les conditions critiques d'apparition du défaut.

En résumé, nous avons montré, dans le cas du PP, que l'angle formé par les parois du convergent conditionnait le niveau de contrainte élongationnelle du fluide sur l'axe de symétrie. Contre toute attente, la DCN ne semble pas pouvoir décrire l'initiation du défaut, d'une forme de convergent à l'autre. Cette grandeur s'était pourtant avérée particulièrement pertinente, lors de l'étude appliquée à différents rapports de contraction. Il semble que le déclenchement de l'instabilité ne puisse être caractérisé dans une direction unique de l'espace, notamment lorsque l'on considère différentes formes de convergents. L'angle α joue assurément un rôle quant à la déstabilisation de l'écoulement principal : il serait nécessaire, à ce stade de l'étude, de connaître la répartition des contraintes sur mais aussi de part et d'autre de l'axe de symétrie. Le phénomène de déstabilisation de l'écoulement pourrait en effet s'avérer beaucoup plus complexe et supposer, dans son interprétation, un site d'initiation différent suivant la forme du convergent adoptée.

V. 2. Etude du déclenchement de l'instabilité volumique périodique par vélocimétrie laser-Doppler

V. 2. 1. Principe de calcul des taux de déformation et des déformations, selon la direction d'écoulement

Nous nous intéressons maintenant à l'accélération ainsi qu'à la déformation que subit le fluide le long de l'axe de symétrie du réservoir.

Pour cela, nous avons, grâce au système LDV, mesuré des profils de vitesse $V_x(X)$, pour différentes positions sur l'axe de symétrie, selon l'intersection des plans $Y = 0$ et $Z = 0$. La figure suivante présente les profils obtenus avec le PS 1, pour différents taux de cisailement apparents.

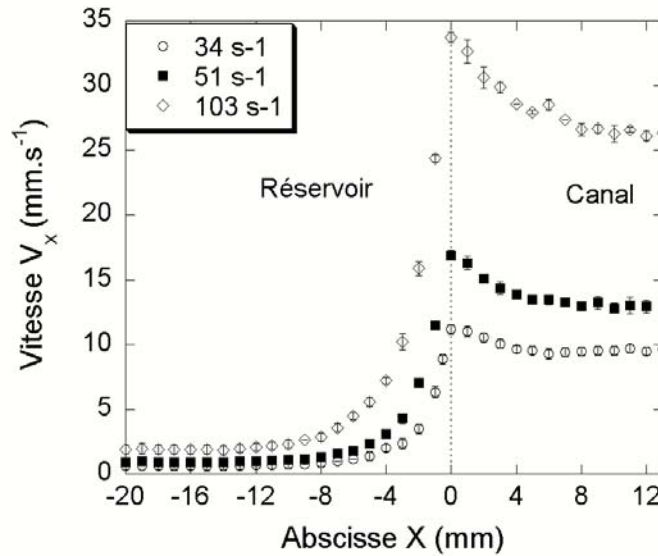


Fig. 5. 10 : Profils de vitesse $V_x(X)$ mesurés le long de l'axe de symétrie, pour différents taux de cisailement apparents, à 180 °C ($L = 20.75$ mm, $H = 1.0$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

On remarque la présence de trois zones distinctes au sein de l'écoulement, selon l'axe de symétrie. La première est relative au champ de vitesse totalement développé dans le réservoir, pour laquelle la vitesse mesurée demeure constante quelle que soit la position X sur l'axe. La deuxième zone concerne l'écoulement convergent autour de la contraction, pour laquelle le fluide est soumis à une accélération puis à une décélération dès son passage en aval de l'orifice. Elle débute pour une abscisse X approximative de -12 mm et prend fin pour $X \approx 6$ mm, d'après la figure 5. 10. Enfin, la troisième zone d'écoulement observée appartient au canal d'écoulement, au sein duquel le champ devient à nouveau totalement développé, caractérisé par une vitesse constante le long de l'axe. La présence d'un overshoot de vitesse prononcé à l'entrée du canal d'écoulement témoigne du caractère élastique du polymère extrudé.

Ainsi, le matériau est soumis à d'importantes sollicitations élongationnelles, si l'on en juge par les changements de vitesse V_x importants qu'il subit selon les positions X . Sur une distance de 12 mm juste en amont de la contraction, sa vitesse est en effet multipliée par un facteur de l'ordre de 16 à 18, d'après les profils présentés figure 5. 10.

A partir de ces données, on a calculé la pente des profils $V_x(X)$ qui est égale au taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$. En effet, sur l'axe de symétrie du réservoir défini par l'intersection des plans $Y = 0$ et $Z = 0$, le polymère fondu n'est pas soumis à du cisaillement mais uniquement à de l'élongation pure, selon la direction d'écoulement X :

$$\dot{\epsilon}_{xx} = \frac{dV_x(X)}{dX} \quad \text{Eq. 5. 2.}$$

Le profil de vitesse $V_x(X)$ a été caractérisé par des courbes de tendance de type polynomial, de façon à calculer la valeur de la tangente, en chaque point X .

Les fonctions de « lissage » ont été utilisées selon deux intervalles distincts de X . A titre d'exemple, d'après la figure 5. 10, on a estimé les diverses fonctions pour $X \in [-20 ; 0]$ et pour X

$\in [0 ; 13]$. En effet, le point d'abscisse zéro est anguleux et présente deux demi-tangentes, respectivement relatives à l'amont et à l'aval de la contraction.

Nous avons tracé, sur la figure 5. 11, l'évolution de $\dot{\epsilon}_{xx}$ en fonction de X , pour les trois taux de cisaillement apparents utilisés à la figure précédente.

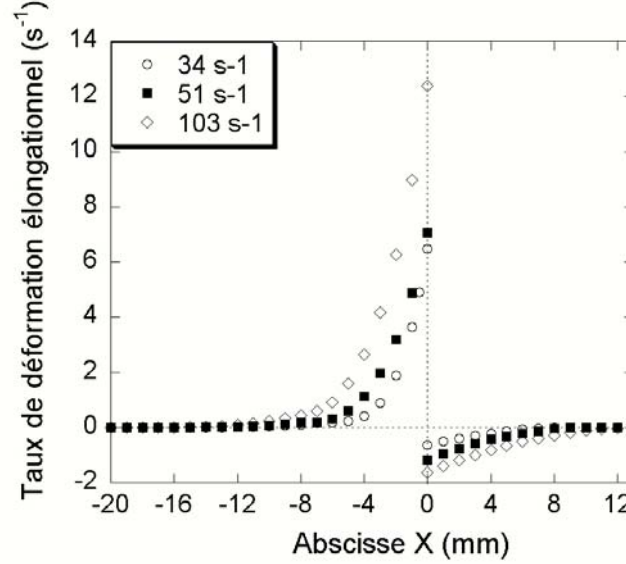


Fig. 5. 11 : Variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$ le long de l'axe de symétrie, pour différents taux de cisaillement apparents, à 180 °C ($L = 20.75$ mm, $H = 1.0$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

On observe que, dans les deux zones d'écoulement où le champ de vitesse nous est apparu totalement développé à la figure 5. 10, le taux de déformation élongationnel est nul. Pour la zone intermédiaire, on remarque que, dès l'abscisse X de -12 mm, $\dot{\epsilon}_{xx}$ commence à augmenter progressivement. A proximité de l'orifice ($X \in [-4 ; 0]$), la vitesse de déformation augmente rapidement pour atteindre un maximum à la contraction. En aval, elle devient négative, traduisant l'overshoot en vitesse observé précédemment dans le canal d'écoulement.

De plus, la valeur absolue du taux de déformation augmente avec le taux de cisaillement apparent imposé. Ainsi, pour un débit réduit de 103 s⁻¹, $\dot{\epsilon}_{xx}$ atteint à la contraction une valeur de 12.4 s⁻¹, contre 6.5 et 7.1 s⁻¹ pour les taux de cisaillement apparents respectifs de 34 et 51 s⁻¹. Ce sont d'ores et déjà des valeurs nettement supérieures à celles couramment rencontrées en rhéométrie élongationnelle [33].

D'après Wassner et al. [33], il est également possible d'estimer l'histoire de la déformation du fluide le long de l'axe de symétrie du réservoir. Pour cela, on calcule le temps nécessaire au parcours du polymère d'une position X_1 à une position X_2 . Il s'exprime comme suit :

$$t = \int_{X_1}^{X_2} \frac{dX}{V_X(X)} \quad \text{Eq. 5. 3.}$$

Nous avons calculé cette fonction à partir des profils $V_X(X)$, telle que, pour l'abscisse relative au début de la mesure ($X = -20$ mm), le temps prend la valeur zéro. A partir de cette position, on calcule l'intégrale issue de la relation 5. 3.

On en déduit la déformation ϵ_{xx} par la relation 5. 4 [33].

$$\varepsilon_{xx} = \int_{x_1}^{x_2} \dot{\varepsilon}_{xx}(X) \frac{dt(X)}{dX} dX \quad \text{Eq. 5. 4.}$$

Pour les trois taux de cisaillement apparents utilisés à la figure précédente, on a représenté sur la figure 5. 12 la variation de la déformation ε_{xx} en fonction de X .

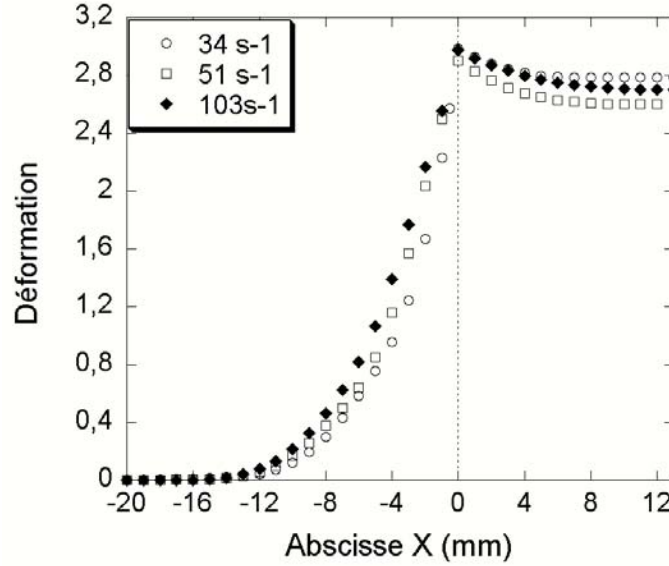


Fig. 5. 12 : Variation de la déformation ε_{xx} estimée le long de l'axe de symétrie pour différents taux de cisaillement apparents, à 180 °C ($L = 20.75$ mm, $H = 1.0$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

Pour des abscisses X inférieures à -12 mm, la déformation demeure nulle. Le fluide est soumis à une déformation maximale à la contraction qui prend les valeurs respectives de 2.99, 2.90 et 2.97 pour les taux de cisaillement apparents de 34, 51 et 103 s^{-1} . La déformation ne semble donc pas dépendre du débit d'écoulement imposé.

En fait, ce résultat était prévisible : en effet, si l'on considère la relation 5. 4, on peut l'intégrer directement, sans avoir à calculer la fonction temps $t(X)$ intermédiaire. On obtient :

$$\varepsilon_{xx} = \int_{x_1}^{x_2} \dot{\varepsilon}_{xx}(X) \frac{dt(X)}{dX} dX = \int_{x_1}^{x_2} \frac{dV_x(X)}{dX} \frac{dt}{dX} dX = \int_{V_1}^{V_2} \frac{dV_x(X)}{V_x(X)} = \ln\left(\frac{V_2}{V_1}\right) \quad \text{Eq. 5. 5.}$$

où V_1 et V_2 sont les vitesses axiales en X_1 et X_2 , respectivement.

De plus, on peut donner une estimation des vitesses V_1 et V_2 par les relations 5. 6 et 5. 7, en supposant que la vitesse varie peu suivant Y :

$$V_1 \approx \frac{Q}{S_1} \quad \text{Eq. 5. 6.}$$

$$V_2 \approx \frac{Q}{S_2} \quad \text{Eq. 5. 7.}$$

La relation 5. 5 s'exprime alors simplement par la relation 5. 8.

$$\varepsilon_{xx} \approx \ln \frac{S_1}{S_2} \quad \text{Eq. 5. 8.}$$

La déformation que subit le fluide en élongation pure le long de l'axe est donc uniquement tributaire des rapports de sections imposés. C'est effectivement ce que nous observons en effectuant le calcul de ε_{xx} de façon rigoureuse, d'après la relation 5. 4.

Le graphique 5. 13 présente la variation de la déformation, pour différentes géométries de convergent.

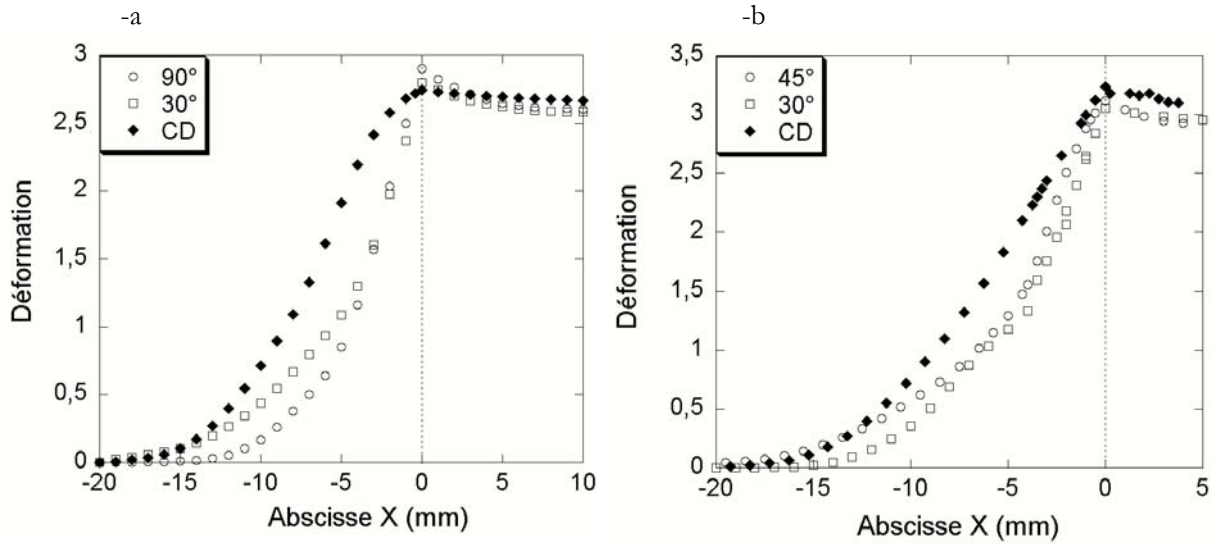


Fig. 5. 13 : Variation de la déformation ε_{xx} estimée le long de l'axe de symétrie, pour différentes géométries de convergent, avec $H = 1.0$ mm et $\dot{\gamma}_{app} = 51$ s⁻¹ (a) et avec $H = 0.5$ mm et $\dot{\gamma}_{app} = 420$ s⁻¹ (b), à 180 °C ($L/H = 20.75$).

Notons que le fluide se déforme de façon moins brutale avec l'utilisation d'un convergent doux. Néanmoins, on observe que la déformation totale est sensiblement la même d'une géométrie de convergent à l'autre. Selon l'axe de symétrie du réservoir, la déformation que subit le fluide à l'approche de la contraction reste donc la même, quelle que soit la forme du convergent.

A l'inverse, d'après la figure 5. 14, on vérifie bien que ε_{xx} est dépendante du rapport de contraction utilisé.

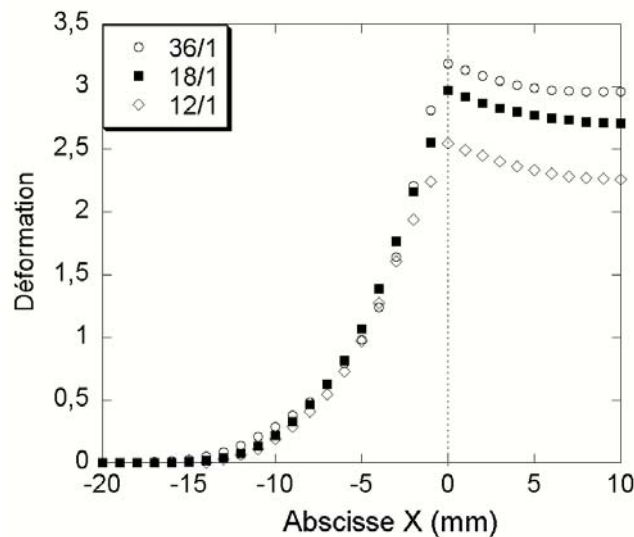


Fig. 5. 14 : Variation de la déformation ε_{xx} estimée le long de l'axe de symétrie, pour différents rapports de contraction, à 180 °C ($L/H = 20.75$, $Q = 176$ mm³ s⁻¹ et $\alpha = 90^\circ$).

Ainsi, la déformation atteinte à la contraction est d'autant plus importante que le rapport de contraction est sévère. Cette conclusion est valable non seulement pour le cas de la contraction

brusque mais également dans le cas des convergents de demi-angle 30 et 45° et du convergent doux (la comparaison des figures 5. 13. a et 5. 13. b le montre puisque d'une figure à l'autre le rapport de contraction prend la valeur 18/1 et 36/1 et que les déformations maximales prennent respectivement et approximativement les valeurs de 2.75 et de 3).

La relation 5. 8 apparaît tout à fait en adéquation avec les mesures de vitesse et leur exploitation. En effet, on calcule, par la relation 5. 8, les valeurs de 2.48, 2.89 et 3.58 associées aux rapports de contraction de 12/1, 18/1 et 36/1. Ce sont des valeurs qui restent particulièrement proches de celles présentées sur la figure 5. 14 (2.55, 2.97 et 3.19, respectivement).

En définitive, la déformation totale reste très peu dépendante du débit d'écoulement et de la géométrie du convergent. Par conséquent, à ce stade de l'étude, il apparaît que l'instabilité volumique périodique, initiée pour des taux de cisaillement apparents très différents, d'une géométrie de convergent à l'autre, ne peut être caractérisée en terme de déformation élongationnelle critique, suivant la direction X de l'espace. Nous nous focaliserons donc essentiellement, dans la suite de l'étude, sur la variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$ qui nous est apparu comme un critère beaucoup plus adapté.

V. 2. 2. Influence du rapport de contraction et de la forme du convergent sur $\dot{\epsilon}_{xx}$

Précisons que cette partie de l'étude présente de façon générale l'influence des paramètres géométriques sur $\dot{\epsilon}_{xx}$, pour un débit ou un débit réduit donné. Les conclusions que nous obtenons des courbes présentées ont bien entendu été vérifiées pour de nombreux autres taux de cisaillement apparents. Nous présentons ici les résultats les plus représentatifs des tendances généralement observées, dans le cas du PS 1 exclusivement. Le comportement du PP a aussi été étudié dans quelques configurations géométriques (convergent de demi-angle 90°). Il présente les mêmes conclusions que le PS 1.

❖ Influence du rapport de contraction

La figure 5. 15 montre la variation du taux de déformation élongationnel obtenue avec une contraction brusque, pour trois rapports de contraction et un même débit d'écoulement.

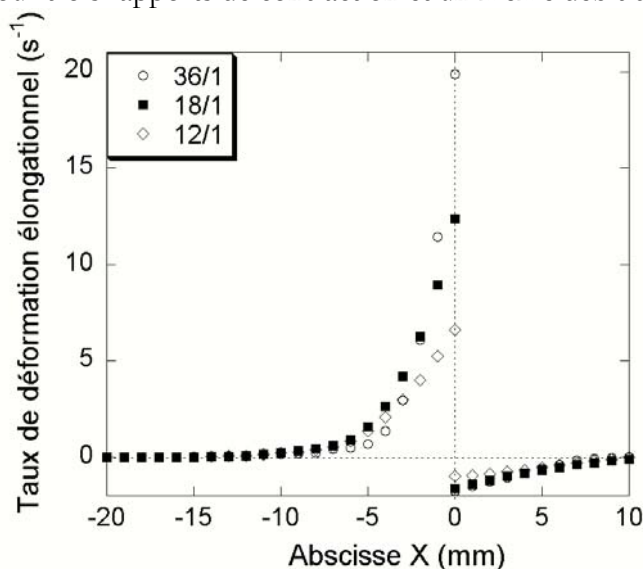


Fig. 5. 15 : Variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$ estimé le long de l'axe de symétrie, pour différents rapports de contraction, à 180 °C ($L/H= 20.75$, $Q = 176 \text{ mm}^3 \text{ s}^{-1}$ et $\alpha = 90^\circ$).

A même débit d'écoulement imposé dans le réservoir, on note que la variation des vitesses de déformation demeure très différente. Plus le rapport de contraction est sévère et plus

l'augmentation de la vitesse de déformation est brutale. Il s'agit d'une observation qui conforte celle obtenue en biréfringence d'écoulement.

De plus, $\dot{\epsilon}_{xx}$ atteint des valeurs maximales à la contraction variant sensiblement, de 6.6 à 12.4 et 19.9 s^{-1} , pour les rapports de contraction de 12/1, 18/1 et 36/1.

Les demi-angles de 45 et 30 ° présentent les mêmes tendances que la contraction brusque. En outre, nous avons remarqué que, dans le cas du convergent doux, l'influence du rapport de contraction était encore plus significative : la figure 5. 16 présente les profils de vitesse $V_x(X)$ obtenus pour deux débits d'écoulement, avec un entrefer H de 0.5 et 1.0 mm respectivement.

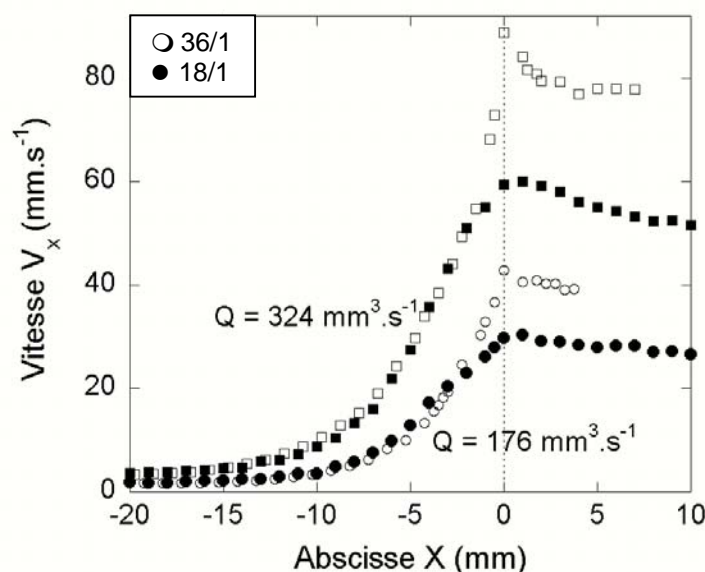


Fig. 5. 16 : Profils de vitesse $V_x(X)$ mesurés le long de l'axe de symétrie, avec deux convergents doux, de rapports de contraction 36/1 et 18/1, à 180 °C ($L/H = 20.75$, $Q_1 = 176 \text{ mm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ et $Q_2 = 324 \text{ mm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$).

L'accélération et la décélération du polymère autour de l'orifice apparaissent différentes d'un rapport de contraction à l'autre. Avec un entrefer H de 0.5 mm, la forme du profil juste en amont de la contraction est comparable à celle généralement observée avec des convergents plus classiques (figure 5. 10). Si l'on multiplie l'entrefer H par un facteur deux (rapport de contraction de 18/1), on réalise que la vitesse varie autour de la contraction de façon beaucoup moins brutale. La forme de la courbe est en effet très « arrondie » autour de la contraction. Précisons que cette dernière observation est propre au cas du convergent doux. En effet, les convergents classiques ne présentent pas de phénomène de « bosse » à la contraction, même avec un rapport de contraction de 18/1.

La figure 5. 17 montre les taux de déformation associés aux profils de vitesse présentés à la figure 5. 16.

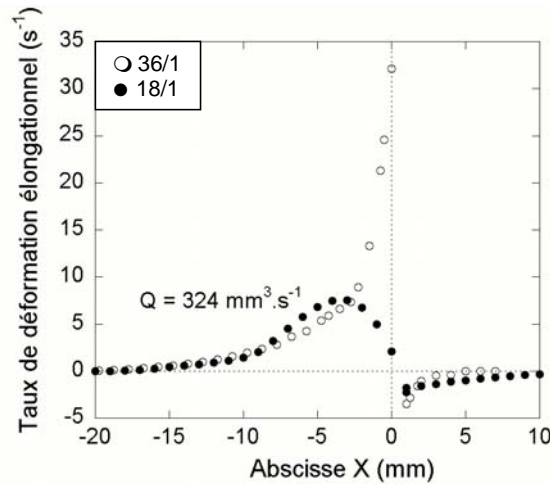


Fig. 5. 17 : Variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$ le long de l'axe de symétrie, avec deux convergents doux, de rapport de contraction 36/1 et 18/1, à 180 °C ($L/H= 20.75$, et $Q= 324 \text{ mm}^3 \text{ s}^{-1}$).

Par souci de clarté, nous n'avons représenté qu'un seul débit d'écoulement. D'autres débits ont également été étudiés et présentent les mêmes formes de courbes.

Comme nous l'avons observé sur la figure 5. 15 avec l'exemple d'une contraction brusque, le taux de déformation maximal est nettement moins élevé avec l'utilisation d'un faible rapport de contraction. De plus, la décélération du polymère fondu en aval est moins conséquente.

La forme des courbes obtenues est par ailleurs fondamentalement différente. Avec un rapport de contraction de 18/1, elle rappelle la courbure obtenue en biréfringence d'écoulement pour l'évolution de la première différence de contraintes normales le long de l'axe de symétrie. $\dot{\epsilon}_{xx}$ passe par un maximum, non pas à la contraction, mais pour une position X située à 3 mm en amont. En aval de cette position, l'accélération du fluide diminue pour devenir négative, juste en aval de l'orifice. De plus, la déformation varie de façon plus douce autour de la contraction (Figure 5. 18).

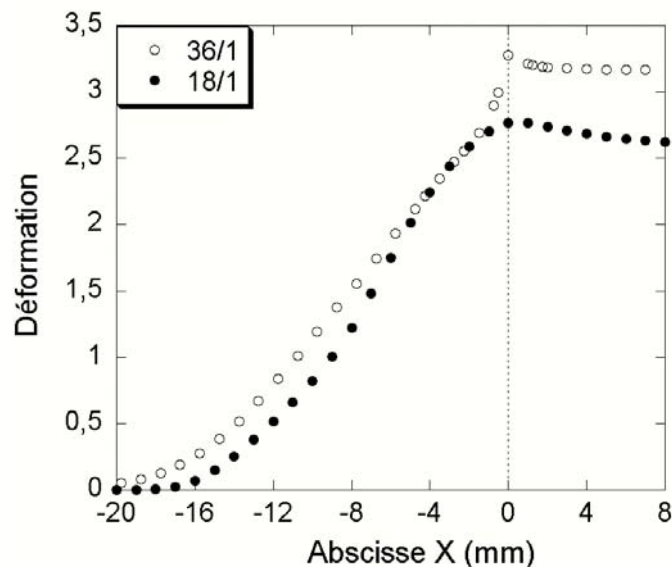


Fig. 5. 18 : Variation de la déformation ϵ_{xx} le long de l'axe de symétrie, avec deux convergents doux de rapports de contraction 36/1 et 18/1, à 180 °C ($L/H= 20.75$ et $Q= 324 \text{ mm}^3 \text{ s}^{-1}$).

En définitive, le comportement du convergent doux reste très singulier puisque la variation des vitesses de déformation qu'il induit dépend de manière significative de l'entrefer H utilisé.

❖ Influence de la forme du convergent

La figure suivante présente la variation du taux de déformation élongationnel dans le cas de convergents de demi-angle 90, 45 et 30 ° ainsi que dans le cas du convergent doux, à même taux de cisaillement apparent.

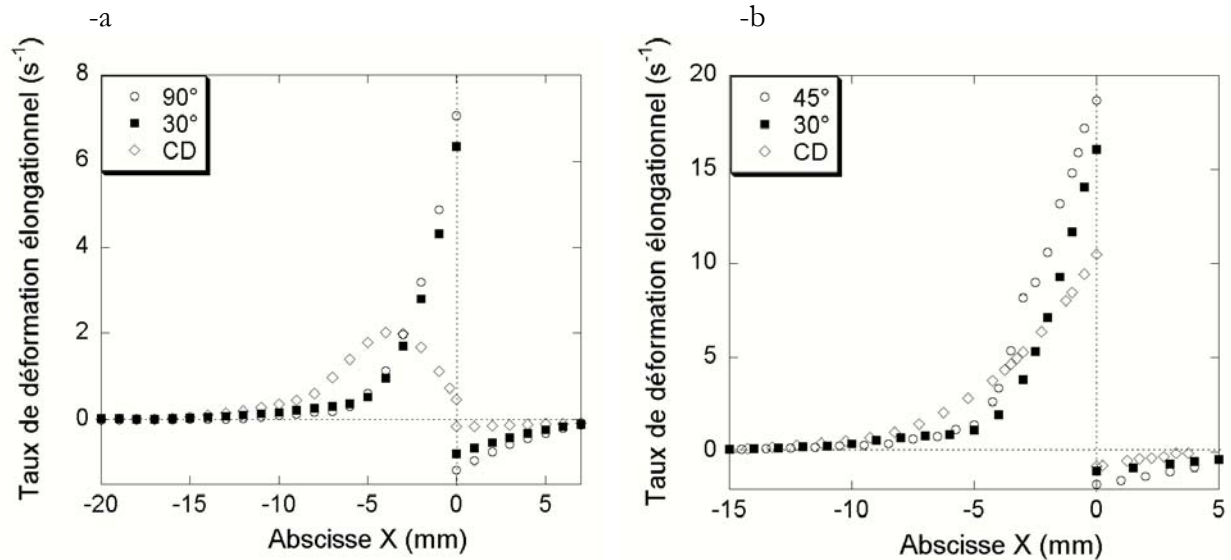


Fig. 5. 19 : Variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$ estimé le long de l'axe de symétrie, pour différentes géométries de convergent, avec $H = 1.0$ mm et $\dot{\gamma}_{app} = 51$ s⁻¹ (a) et avec $H = 0.5$ mm et $\dot{\gamma}_{app} = 420$ s⁻¹ (b), à 180 °C ($L/H = 20.75$).

D'après les deux graphiques, on remarque que la forme des courbes obtenues diffère d'une géométrie à l'autre. En effet, le taux de déformation élongationnel varie de façon plus progressive avec le convergent doux, qui comme nous l'avons observé en biréfringence d'écoulement, anticipe la contraction par rapport aux convergents classiques.

De plus, on observe que les vitesses de déformation possèdent une valeur maximale d'autant plus élevée que les formes de convergent utilisées sont sévères. Elles s'élèvent, avec un rapport de contraction de 18/1, à 7, 6.3 et 2 s⁻¹, pour les convergents pris par ordre de sévérité décroissante. Avec un rapport de contraction de 36/1, elles prennent les valeurs suivantes pour 45, 30° et le convergent doux : 18.7, 16.1 et 10.5 s⁻¹.

Par rapport à un convergent de forme classique, le profil « doux » permet de diminuer la vitesse de déformation maximale d'au moins deux tiers, notamment avec un rapport de contraction de 18/1. Rappelons, par ailleurs, qu'il provoque une accélération très progressive du fluide le long de l'axe de symétrie. On remarque que la décélération semble moins accentuée avec ce dernier convergent, puisque $\dot{\epsilon}_{xx}$ prend des valeurs très peu négatives, en aval de la contraction.

V. 2. 3. Conditions d'initiation du défaut pour le PS 1

Afin de décrire l'initiation du défaut, nous avons comparé, dans les conditions critiques de déclenchement de l'instabilité, les taux de déformation $\dot{\epsilon}_{xx}$ d'une géométrie d'écoulement à l'autre.

❖ Etude des trois rapports de contraction

Le graphique 5.20 présente les profils de vitesse $V_x(X)$ critiques, dans le cas d'une contraction brusque, pour des rapports de contraction de 36/1, 18/1 et 12/1 (soit des entrefers H de 0.5, 1.0 et 1.5 mm).

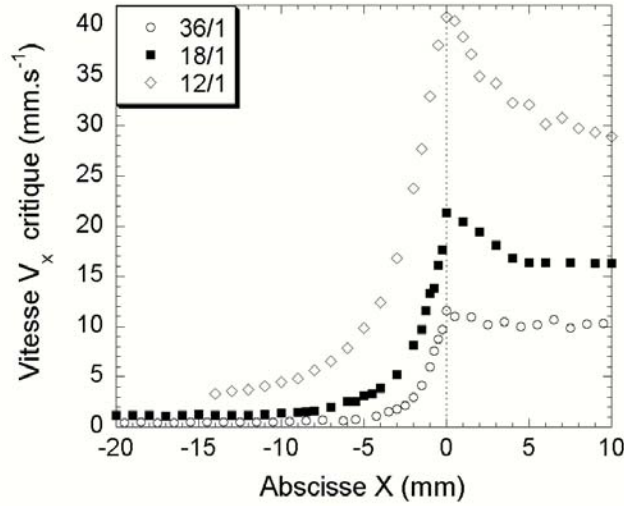


Fig. 5. 20 : Profils de vitesse $V_X(X)$ dans les conditions critiques de déclenchement du défaut, pour différents rapports de contraction, à 180 °C ($L/H = 20.75$ et $\alpha = 90^\circ$).

Le graphique confirme le fait que les vitesses d'écoulements critiques sont d'autant plus élevées que le rapport de contraction est faible. A partir de ces données, on a estimé les taux de déformation critiques élongationnels.

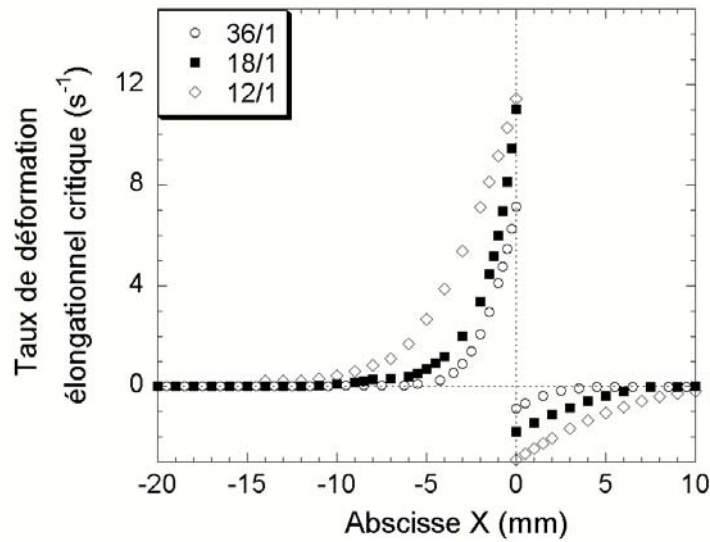


Fig. 5. 21 : Variation du taux de déformation élongationnel dans les conditions critiques de déclenchement du défaut, pour différents rapports de contraction, à 180 °C ($L/H = 20.75$ et $\alpha = 90^\circ$).

A la contraction, les taux de déformations critiques possèdent les valeurs de 7.2, 11 et 11.4 s^{-1} pour les rapports de contraction respectifs de 36/1, 18/1 et 12/1. Au vu des différents niveaux de vitesses critiques impliqués, la dispersion des valeurs demeure relativement faible. Il semble que la vitesse de déformation soit un paramètre assez déterminant quant au déclenchement de l'instabilité volumique périodique, pour différents rapports de contraction.

❖ Etude des quatre géométries de convergent

La figure 5. 22 présente les profils de vitesse critiques obtenus avec les convergents de demi-angle 30, 45 et 90 °, possédant des entrefers H de 0.5 et 1.0 mm.

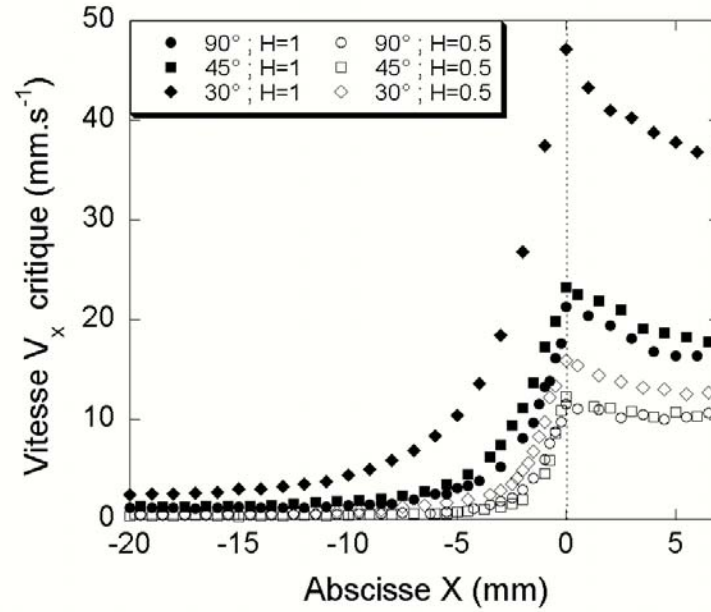


Fig. 5. 22 : Profils de vitesse $V_x(X)$ dans les conditions critiques de déclenchement du défaut, pour différentes géométries de convergent et différents rapports de contraction, à 180 °C ($L/H = 20.75$).

On rappelle qu'un rapport de contraction peu élevé (tel que $H = 1.0$ mm) permet d'atteindre des vitesses critiques beaucoup plus importantes, représentées en sigles pleins sur le graphique. De plus, on peut noter que l'instabilité volumique périodique se déclenche pour des débits d'écoulement très proches avec des demi-angles de convergent de 45 et 90°. Le convergent de demi-angle 30° permet d'atteindre des vitesses notablement plus élevées.

De ces profils, on a pu estimer les taux de déformation critiques, dans chaque configuration géométrique, comme en témoigne la figure 5. 23.

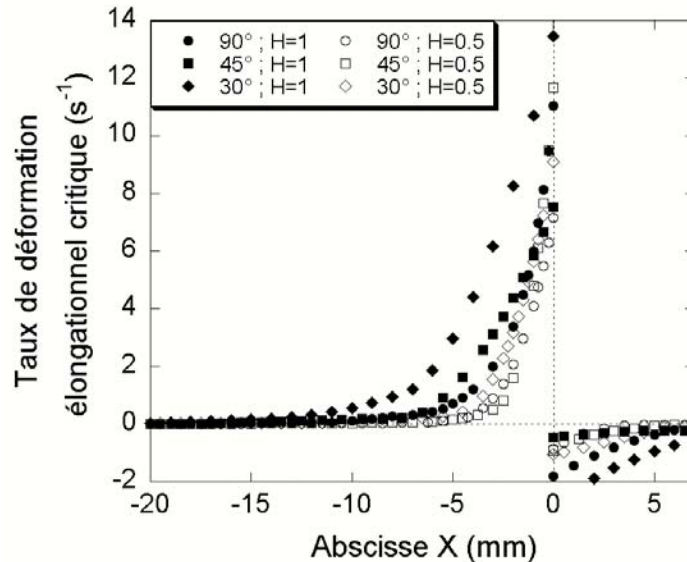


Fig. 5. 23 : Variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$ dans les conditions critiques de déclenchement du défaut, pour différentes géométries de convergent et différents rapports de contraction, à 180 °C ($L/H = 20.75$).

Les taux de déformation critiques atteints à la contraction s'échelonnent entre les valeurs de 7.2 et 13.5 s^{-1} , toutes géométries confondues. Ces vitesses de déformation maximales se classent de manière aléatoire en fonction de la forme du convergent utilisé. Il semble cependant que les courbes associées au faible rapport de contraction présentent des maxima légèrement plus élevés

qu'avec le rapport de contraction plus élevé. Cette observation est toutefois à considérer avec précaution car elle reste seulement vraie dans le cas de deux formes de convergent (30 et 90°) sur trois.

Le comportement du fluide associé à la géométrie du convergent doux nous est apparu particulièrement intéressant. Avec un entrefer H de 0.5 mm, l'instabilité est observée et nous nous sommes placés dans les conditions critiques d'apparition. La figure 5. 24, présente les taux de déformation critiques obtenus avec un entrefer H de 0.5 mm, pour les quatre géométries de convergent.

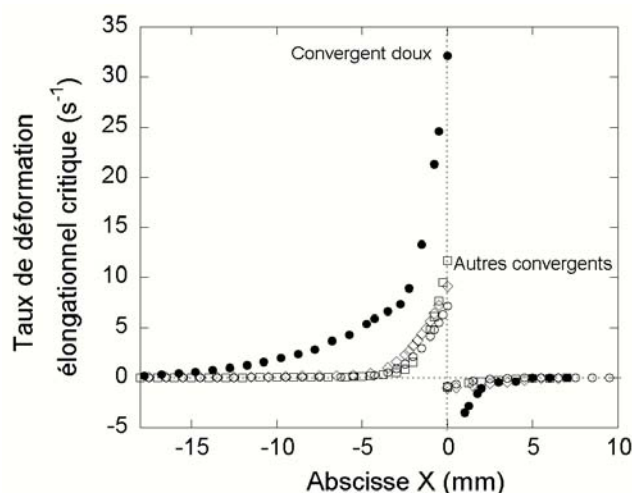


Fig. 5. 24: Variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$ dans les conditions critiques de déclenchement du défaut, pour différentes géométries de convergent, à 180 °C ($L/H= 20.75$ et $H = 0.5$ mm).

Le graphique 5. 24 nous montre que la géométrie du convergent doux permet d'atteindre des vitesses de déformation étonnemment élevées, de plus de 30 s^{-1} , avant que l'écoulement d'entrée ne se déstabilise. De plus, les mesures de vitesses réalisées avec un entrefer H de 1.0 mm sont en accord avec l'observation précédente. Comme nous l'avons montré au chapitre précédent, le dispositif expérimental ne nous permet pas d'atteindre le défaut avec un entrefer H de 1.0 mm. Nous nous sommes placés dans les conditions d'écoulement maximales, pour lesquelles aucune déstabilisation d'entrée n'est observée. La figure 5. 25 présente les résultats obtenus.

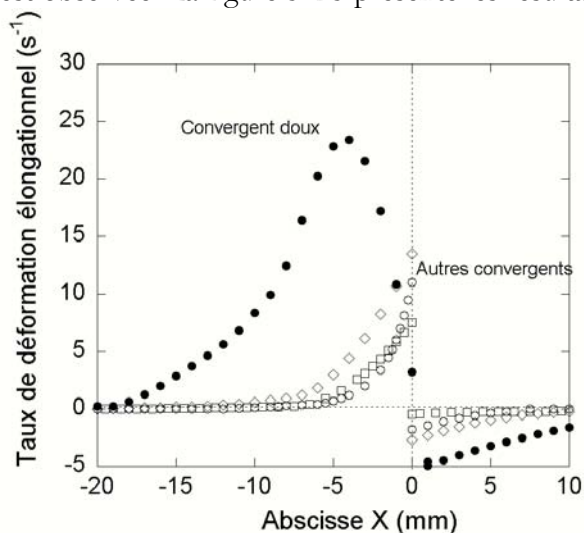


Fig. 5. 25: Variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$ dans les conditions critiques de déclenchement du défaut (ou dans les conditions d'écoulement maximales pour le convergent doux), pour différentes géométries de convergent, à 180 °C ($L/H= 20.75$ et $H = 1.0$ mm).

Dans ce cas, le fluide s'écoulant dans le convergent doux est capable d'être soumis à une vitesse de déformation $\dot{\epsilon}_{xx}$ de 23.4 s^{-1} , sans qu'aucune déstabilisation d'entrée ne se mette en place. Notons que les autres convergents présentent une instabilité pour des valeurs de $\dot{\epsilon}_{xx}$ comprises entre 7.5 et 13.5 s^{-1} .

Ces derniers résultats prouvent qu'il ne « suffit pas » simplement que le fluide atteigne une vitesse de déformation critique sur l'axe pour que l'instabilité prenne naissance. Ils apparaissent tout à fait en adéquation avec les conclusions que nous a fournies la biréfringence d'écoulement. L'information élongationnelle portée par l'axe de symétrie, que ce soit la première différence de contraintes normales ou le taux de déformation, est insuffisante pour caractériser la naissance du défaut, pour différentes formes de convergents.

En conclusion du paragraphe V. 2. 3, il est essentiel de noter que les valeurs du taux de déformation critique à la contraction restent finalement du même ordre de grandeur, quel que soit le rapport de contraction utilisé.

On observe également que les valeurs critiques associées aux convergents de demi-angle 30 , 45 et 90° semblent s'organiser de manière aléatoire les uns par rapport aux autres. Il est important de préciser qu'une incertitude sur le calcul de la vitesse de déformation existe. Elle dépend de la maîtrise des conditions d'écoulement expérimentales (température d'écoulement en particulier), de la position en trois dimensions du point de mesure LDV mais aussi et particulièrement de la méthode de lissage appliquée aux profils de vitesses obtenus (degré du polynôme utilisé...).

Le comportement de l'écoulement d'entrée avec le convergent doux reste très singulier. En effet, il apparaît comme une exception, ne permettant en aucun cas de généraliser la vitesse de déformation comme critère unique de déclenchement du défaut. Rappelons que la forme de la courbe $\dot{\epsilon}_{xx}(X)$ est différente des convergents classiques, témoignant de l'accélération plus progressive du fluide à son approche de la contraction.

V. 2. 4. Comparaison des comportements du PS 1 et du PP

Au cours des expériences menées en biréfringence d'écoulement, l'estimation de DCN critiques n'était pas quantifiable dans le cas du PS 1. Nous n'avons pu comparer, d'un polymère à l'autre, les niveaux de contraintes critiques nécessaires au déclenchement de l'instabilité volumique périodique. Par contre, en vélocimétrie laser-Doppler, nous avons pu nous intéresser à la comparaison des taux de déformation critiques, entre les deux matériaux.

Sur la figure 5. 26, sont représentés les profils de vitesse $V_x(X)$ critiques obtenus pour les rapports de contraction $36/1$, $18/1$, $12/1$, dans le cas du PS 1 et du PP.

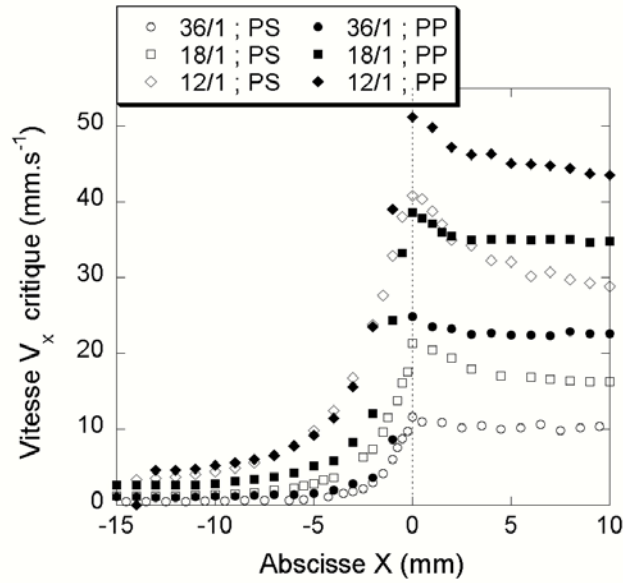


Fig. 5. 26 : Profils de vitesse $V_X(X)$ dans les conditions critiques de déclenchement du défaut, avec différents rapports de contraction, pour le PS 1, à 180 °C (a) et pour le PP, à 200 °C (b) ($L/H = 20.75$ et $\alpha = 90^\circ$).

Les vitesses critiques relatives au PP sont représentées en sigles pleins sur le graphique. Elles sont plus élevées que dans le cas du PS 1. Pour chacun des deux matériaux, les vitesses d'écoulement critiques sont d'autant plus élevées que le rapport de contraction est faible.

La figure 5. 27 compare les taux de déformation critiques issus de l'étude des deux matériaux.

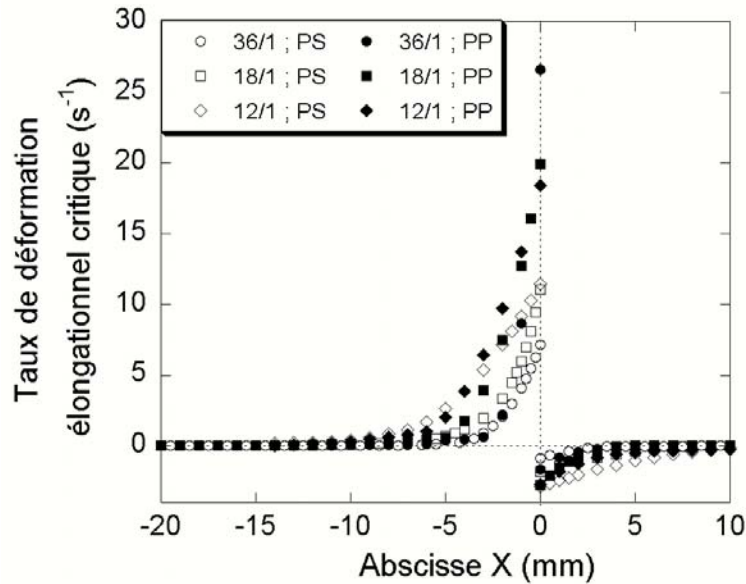


Fig. 5. 27 : Variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$ dans les conditions critiques de déclenchement du défaut, avec différents rapports de contraction, pour le PS 1, à 180 °C (a) et pour le PP, à 200 °C (b) (avec $L/H = 20.75$ et $\alpha = 90^\circ$).

Pour le PP, les valeurs de $\dot{\epsilon}_{xx}$ critique s'élèvent, à la contraction, à 26.6, 19.9 et 18.4 s^{-1} pour les rapports de contraction de 36/1, 18/1 et 12/1. Elles sont deux fois plus importantes que les valeurs relatives au PS 1.

Il s'agit là d'un résultat qui conforte les conclusions émises en rhéométrie capillaire. Les taux de déformation estimés par la méthode de Cogswell possédaient, pour une même température de

référence de 200 °C, une valeur moyenne de 9 et 17.4 s⁻¹ pour le PS 1 et le PP, respectivement. Précisons que la comparaison entre les valeurs critiques obtenues en écoulement axisymétrique et en filière plate est hasardeuse et ne sera pas développée à travers cette étude. En effet, les géométries de convergents restent différentes, au même titre que les rapports de contraction considérés.

La figure 5. 27 montre néanmoins la même tendance pour le PP à être soumis à des vitesses de déformation plus importantes, avant que la déstabilisation de l'écoulement d'entrée ne se déclenche.

Ces derniers résultats tendent à confirmer le fait que l'initiation de l'instabilité volumique périodique pourrait être caractérisée, pour un matériau donné, par une vitesse de déformation critique, atteinte par le fluide sur l'axe de symétrie du réservoir.

Rappelons néanmoins que cette constatation ne reste valable qu'avec l'utilisation de demi-angles de convergent de 90, 45 et 30°, quel que soit le rapport de contraction considéré. En aucun cas, elle n'est généralisable à l'étude du convergent doux, pour lequel le défaut prend naissance alors que les vitesses de déformation mesurées sur l'axe sont supérieures à 30 s⁻¹.

Enfin, lors de cette étude comparative menée entre deux matériaux de structure moléculaire différente, il semblerait particulièrement intéressant de déterminer un nombre de Deborah De critique. Ce dernier nombre traduit en effet la réponse d'un fluide viscoélastique associé à un temps caractéristique λ à une sollicitation qui pourrait, dans notre cas, être caractérisée par le taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$.

V. 3. Etude de l'écoulement en géométrie plane par simulation numérique en éléments finis

L'instabilité volumique périodique étudiée semble étroitement liée aux sollicitations élongationnelles que subit le polymère à son approche de la contraction. Les paragraphes V. 1 et V. 2 ont montré que l'écoulement d'entrée, lors de sa déstabilisation, supposait une première différence de contraintes normales et un taux de déformation élongationnel importants. L'estimation des termes $\sigma_{xx} - \sigma_{yy}$ et $\dot{\epsilon}_{xx}$ a été uniquement effectuée jusqu'ici le long de l'axe de symétrie du réservoir, tel que $Z = 0$. Nous avons essayé, lorsque le dispositif expérimental le permettait, de décrire, par l'estimation de ces grandeurs, l'apparition du défaut. Il semble, au vu des résultats obtenus d'une géométrie d'écoulement à l'autre, que l'information mécanique portée uniquement par l'axe de symétrie soit tantôt pertinente, tantôt insuffisante pour décrire des conditions d'écoulement critiques très différentes.

Ce paragraphe s'inscrit dans la caractérisation de l'écoulement d'entrée de la filière, particulièrement pour les conditions d'écoulement critiques liées à sa déstabilisation. Par la simulation numérique, on va s'attacher à décrire le champs de contrainte régnant dans le réservoir, de même que la vitesse de déformation à laquelle est soumis le fluide dans la région d'entrée de la filière. Ces calculs ont été effectués dans le cas du PS 1 uniquement car il s'agit du matériau pour lequel nous possédons le plus de données rhéologiques.

V. 3. 1. Description du code de calcul et de la loi de comportement utilisés

Nous présentons tout d'abord de manière succincte le matériel et les démarches numériques utilisés. Notons que le but de ce travail concerne exclusivement l'interprétation du défaut volumique par l'utilisation d'outils numériques existants. En aucun cas, nous n'avons eu à développer de tels outils.

Le code de calcul utilisé est basé sur la bibliothèque *MEF++*, développée à l'université de Laval (Québec) par l'équipe du *GIREF*, dirigée par André Fortin. Nous avons disposé d'un code de calcul d'écoulement 2D isotherme, qui a été mis au point au *CEMEF* par Rudy Valette.

❖ Les hypothèses de calcul et la loi de comportement utilisée

Nous avons mis en œuvre une simulation par éléments finis de l'écoulement du PS 1 dans les géométries de filière plate. Les calculs effectués ont donc pour vocation de montrer qu'il est possible d'obtenir une approximation numérique de ces écoulements, à l'aide d'un modèle viscoélastique.

On étudie le problème bidimensionnel de l'écoulement stationnaire isotherme d'un fluide incompressible. Les forces de masse et d'inertie sont négligées. Sous ces deux hypothèses, il est possible d'écrire les relations suivantes :

$$\text{div}(\vec{u}) = 0 \quad \text{Eq. 5. 9.}$$

$$\text{div}(\sigma) = 0 \quad \text{Eq. 5. 10.}$$

avec \vec{u} le vecteur vitesse du fluide et σ le tenseur des contraintes. Ce dernier tenseur s'exprime par la relation 5. 11.

$$\sigma = -pI + \tau \quad \text{Eq. 5. 11.}$$

Comme énoncé précédemment, le tenseur des extra-contraintes τ a été calculé à partir d'une loi de comportement viscoélastique.

Nous avons choisi le modèle « Rolie-Poly », développé par Graham et al. [63]. Il s'appuie sur des équations constitutives de type différentiel, adaptées aux polymères linéaires et initialement issues de la théorie moléculaire du tube. L'intérêt d'un tel modèle est qu'il repose sur trois mécanismes moléculaires, intervenant pour une très large gamme de taux de cisaillement.

En premier lieu, on trouve le phénomène de reptation (diffusion des chaînes sur leur propre contour) intégré dans le modèle originel de Doi-Edwards. Il est caractérisé par le temps de reptation τ_d .

Le deuxième se dénomme en anglais « convective constraint release » (CCR). Ce phénomène prend naissance pour des taux de déformations plus élevés où les chaînes avoisinantes à la chaîne considérée (donc constituant « le tube ») s'orientent. Elles libèrent alors des points d'enchevêtrements avec la chaîne considérée dont le confinement au sein du tube devient plus libre.

Enfin, le troisième mécanisme est l'étirement propre de la chaîne aux grands taux de déformation, caractérisé par le temps de Rouse τ_R .

Ces mécanismes sont propres à trois régimes d'écoulements, comme résumé sur la figure 5. 28.

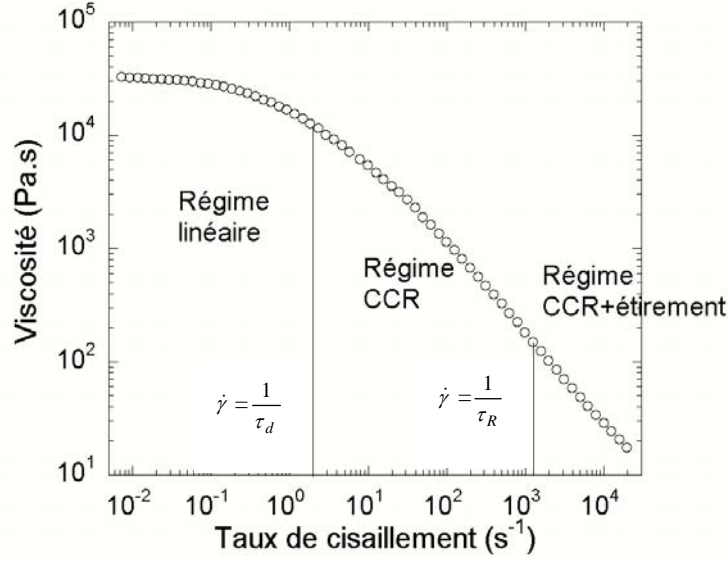


Fig. 5. 28 : Régimes d'écoulement associés aux mécanismes de reptation, CCR et étirement de chaînes.

A partir des mécanismes décrits précédemment, Graham et al. [63] ont proposé un modèle microscopique décrivant le mouvement du tube en terme de position vectorielle de chaque segment du tube $R(s,t)$. Un modèle macroscopique dérivé a, par la suite, été proposé par Likhtman et Graham [64] qui donnent une équation d'évolution pour le tenseur des conformations A , défini comme suit :

$$A = \frac{\langle RR^T \rangle}{R_0^2} \quad \text{Eq. 5. 12.}$$

Le tenseur des extra-contraintes τ^i est alors défini explicitement pour chaque mode de relaxation i :

$$\tau^i = G^i(3A^i - I) \quad \text{Eq. 5. 13.}$$

avec G^i le module associé au spectre linéaire et I le tenseur identité.

La relation 5. 14. présente l'équation utilisée en incluant le mécanisme d'étirement des chaînes. Cette équation est relative aux modes de relaxation les plus longs.

$$\frac{dA^i}{dt} = \nabla u \cdot A^i + A^i \nabla u^T - \frac{1}{\tau_d^i} \left(A^i - \frac{I}{3} \right) - \frac{2(1 - \sqrt{\frac{1}{\text{Tr} A^i}})}{\tau_R} \left(A^i + \beta (\text{Tr} A^i)^\delta \left(A^i - \frac{I}{3} \right) \right) \quad \text{Eq. 5. 14.}$$

où ∇u est le gradient de vitesse. Le paramètre δ introduit dans l'équation 5. 14 a été pris égal à 0.5, comme le préconisent Likhtman et Graham. Les termes β et τ_R sont respectivement associés aux mécanismes de CCR et d'étirement des chaînes. Ils seront identifiés au paragraphe V. 3. 2, au même titre que les paramètres du spectre linéaire (G^i , τ_d^i).

Une forme simplifiée de l'équation générale 5. 14 a été proposée par Likhtman et Graham [64], dans le cas où l'on ne prend pas en compte le mécanisme d'étirement des chaînes. Ainsi, on fait tendre le temps caractéristique associé τ_R (temps de Rouse) vers la valeur 0.

On pose :

$$TrA = 1 + \frac{\Delta}{3} \quad \text{Eq. 5. 15.}$$

avec Δ qui tend vers zéro quand τ_R tend vers zéro.

On obtient les relations 5. 16 et 5. 17 :

$$\frac{2(1 - \sqrt{\frac{1}{TrA}})}{\tau_R} \xrightarrow{\tau_R \rightarrow 0} 2Tr(\nabla u.A) \quad \text{Eq. 5. 16.}$$

$$TrA \xrightarrow[\tau_R \rightarrow 0]{\Delta \rightarrow 0} 1 \quad \text{Eq. 5. 17.}$$

L'équation 5. 14 considérée sans le mécanisme d'étirement des chaînes se ramène ainsi à la relation 5. 18. Elle est relative aux modes de relaxation les plus courts.

$$\frac{dA^i}{dt} = \nabla u.A^i + A^i \nabla u^T - \frac{1}{\tau_d^i} (A^i - \frac{I}{3}) - 2Tr(\nabla u.A^i)(A^i + \beta(A^i - \frac{I}{3})) \quad \text{Eq. 5. 18.}$$

Notons que, au repos, le tenseur des conformations \mathcal{A} vaut $\frac{I}{3}$

❖ Méthode de résolution

On a imposé à $t=0$ le débit en entrée de canal et on calcule de manière instationnaire la solution du problème. On considère que la solution stationnaire est atteinte après un temps égal au plus long temps de relaxation du modèle. D'un point de vue numérique, la méthode retenue consiste à résoudre un problème de Stokes perturbé par les termes viscoélastiques. La discrétisation en temps utilise un schéma d'Euler implicite et une méthode de stabilisation par décentrement amont sur les lignes de courant (méthode SUPG) a été utilisée pour les équations de transport intervenant dans la relation de comportement.

Enfin, rappelons que le calcul numérique par éléments finis des écoulements de fluides viscoélastiques suivant une loi de comportement différentielle reste un problème réputé difficile. Malgré les progrès effectués dans ce domaine, cette résolution numérique reste délicate, dans le cas de débits relativement élevés, car très sensible aux singularités géométriques et la convergence de la solution avec le maillage n'est pas toujours obtenue. Dans le cas viscoélastique, l'état actuel des performances des méthodes numériques utilisées ne permet pas de mener une approche rigoureuse montrant que la solution du problème sera obtenue. On peut néanmoins, en ayant recours à des méthodes de stabilisation et à la stratégie numérique présentée ci-dessus, obtenir une solution approchée du problème.

V. 3. 2. Identification des paramètres de la loi de comportement

Dans le cadre de cette étude, rappelons que l'identification des paramètres rhéologiques n'a été réalisée que pour le PS 1.

En rhéométrie oscillatoire, nous avons identifié, à l'aide du logiciel Rhios qui utilise une méthode de calcul au sens des moindres carrés, le spectre linéaire (G^i, τ_d^i) . Le spectre des temps et modules de relaxation a été initialement estimé pour une température de 200 °C et réduit à une température de 180 °C. Les valeurs du spectre figurent dans le tableau 5. 2.

Modes	τ_d^i (200 °C) (s)	τ_d^i (180 °C) (s)	G^i (Pa)
1	0.0094	0.0481	99888
2	0.0427	0.2185	839
3	0.1943	0.9943	44973
4	0.8834	4.5206	12358
5	4.0173	20.558	5059
6	18.268	93.482	431

Tab. 5. 2 : Spectre linéaire (G^i , τ_d^i), pour le PS 1.

Nous avons limité le nombre de modes à 6 de façon à réduire la durée du temps de calcul. La figure 5. 29 présente les modules complexes expérimentaux ainsi que les valeurs reconstruites à partir du spectre déterminé.

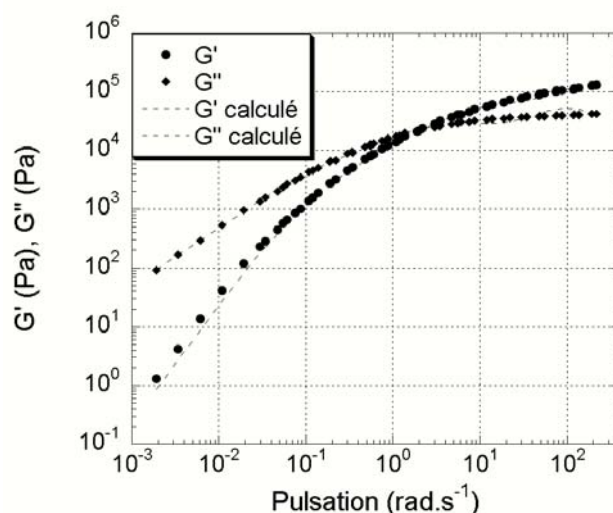


Fig. 5. 29 : Variation des modules complexes expérimentaux et calculés à partir du spectre (G^i , τ_d^i), à 200 °C.

Les temps et modules de relaxation ont été identifiés sur un intervalle de fréquence limité aux faibles fréquences. Cette identification permet, entre autre, d'approximer la courbe de viscosité $\eta(\dot{\gamma})$ dans le régime linéaire défini à la figure 5. 28.

Les paramètres non-linéaires β et τ_R ont fait l'objet d'une identification plus complexe que nous présentons brièvement ci-après et que nous détaillons en Annexe A. X. L'objectif de ce travail d'identification a consisté à déterminer les paramètres du modèle à partir des données expérimentales que nous fournit la rhéométrie, notamment en grandes déformations. En l'occurrence, nous avons utilisé la variation de la viscosité η en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$.

La première partie de l'étude vise à exprimer, en fonction des paramètres β et τ_R et à partir des équations 5. 14 et 5. 18 proposées par Likhtman et Graham [64], le terme du tenseur des conformations A_{xy} qui est relié, en cisaillement simple, à la viscosité η par la relation 5. 19.

$$\eta^i = \frac{3G^i A_{xy}^i(\dot{\gamma}, \beta, \tau_R)}{\dot{\gamma}} \quad \text{Eq. 5. 19.}$$

Cette relation est valable pour un mode de relaxation i défini. La viscosité $\eta(\dot{\gamma})$ est la somme des contributions $\eta^i(\dot{\gamma})$. Le détail des calculs est présenté en Annexe A. X. 1 et A. X. 2, respectivement pour les équations sans et avec étirement.

La deuxième et dernière partie de l'étude a consisté à estimer une fonction « coût » définie par la relation 5. 20.

$$C(\beta, \tau_R) = \sum_{\dot{\gamma}} [\eta(\dot{\gamma})_{EXP} - \eta(\dot{\gamma}, \beta, \tau_R)_{MODELE}]^2 \quad \text{Eq. 5. 20.}$$

avec les termes de viscosité η_{EXP} et η_{MODELE} associés respectivement aux données expérimentales et aux données estimées à partir du modèle viscoélastique.

La fonction C a été représentée en deux dimensions en fonction des paramètres β et τ_R . On a ainsi pu déterminer le couple de valeurs β et τ_R pour lequel la fonction C est minimisée.

La résolution mathématique des équations présentées pour chaque mode de relaxation ainsi que l'optimisation de la fonction « coût » ont été effectuées numériquement, à l'aide de logiciels tels que *MATLAB* et *MAPLE*.

Nous avons observé que la minimisation de la fonction « coût » C est optimale lorsque l'on utilise 3 modes sans étirement et 3 modes avec étirement. Il s'agit d'un bon compromis entre l'implication des mécanismes de CCR et d'étirement, notamment pour les grands taux de déformation. De plus, l'identification des paramètres a consisté non pas à déterminer une valeur de τ_R mais plutôt une valeur de k , que nous définissons par la relation 5. 21.

$$k = \frac{\tau_R}{\tau_d} \quad \text{Eq. 5. 21.}$$

En définitive, les valeurs de β et de k ont pu être identifiées et sont présentées dans le tableau 5. 3.

β	k
0.95	0.01905461

Tab. 5. 3 : Valeurs des coefficients non-linéaires β et k du modèle Rolie-Poly, pour le PS 1.

La figure 5. 30 montre la variation des viscosités expérimentales mesurées en rhéométrie dynamique et calculées à partir du modèle Rolie-Poly muni des paramètres β et k .

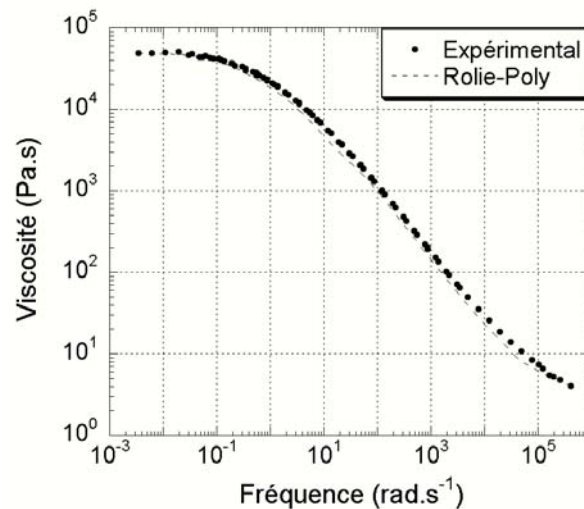


Fig. 5. 30 : Comparaison des courbes de viscosité expérimentale et calculée par le modèle Rolie-Poly, à 200 °C.

Le modèle viscoélastique utilisé permet de rendre compte du comportement en cisaillement simple du matériau pour une large gamme de taux de cisaillement.

V. 3. 3. Géométrie de maillages et conditions limites utilisées

Dans le cas du PS 1, on a pu remarquer que la géométrie du convergent d'entrée conditionne fortement le déclenchement de l'instabilité volumique périodique. Par conséquent, nous avons simulé numériquement l'écoulement dans quatre géométries d'entrée. Il s'agit des trois convergents de demi-angle 90, 45 et 30 ° ainsi que du convergent « doux ».

Nous avons utilisé une géométrie d'entrefer H de 1.0 mm. Le rapport L/H est égal à 20.75, quelle que soit la géométrie.

La figure 5. 31 présente les maillages réalisés dans les quatre géométries de convergent.

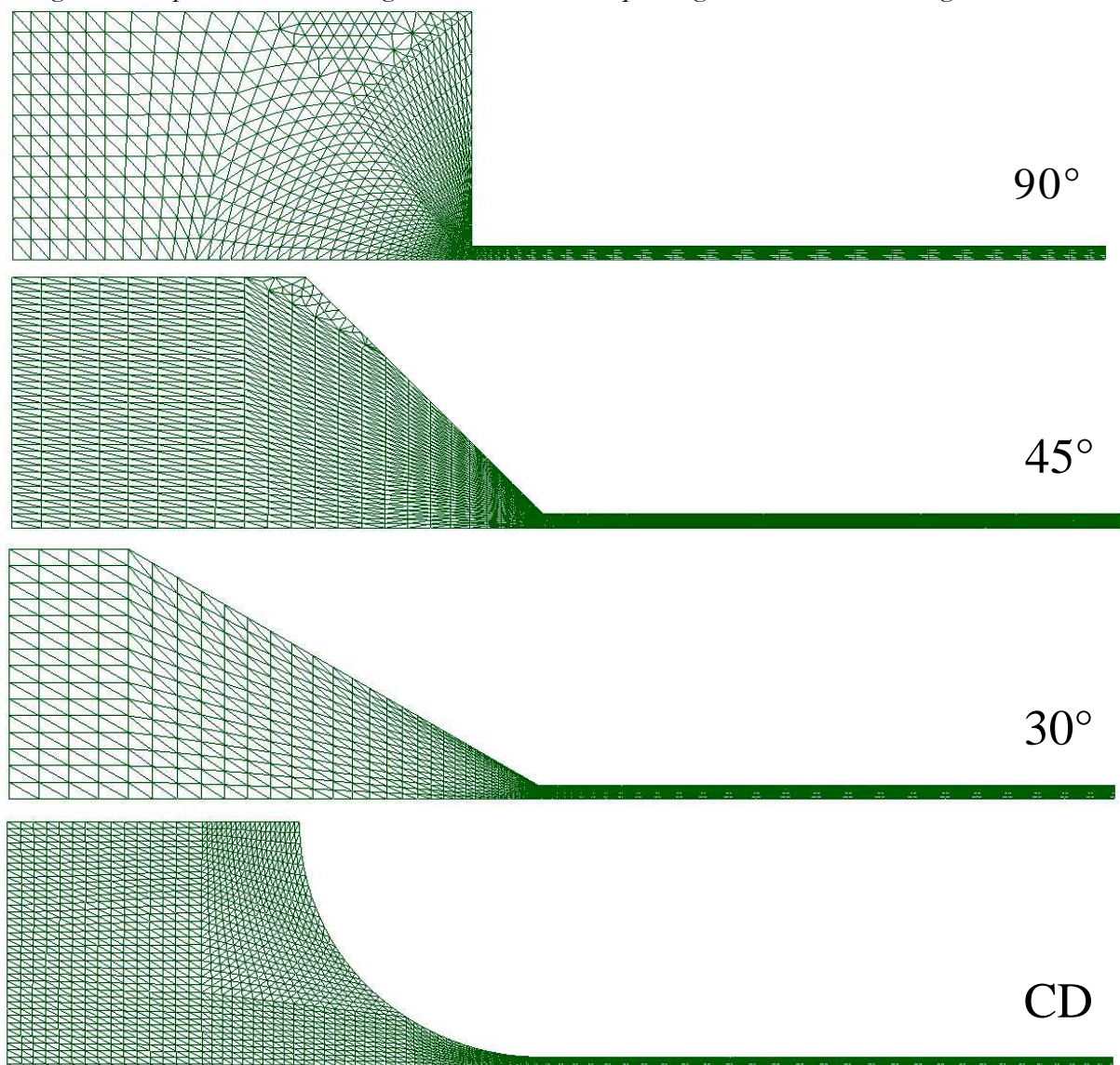


Fig. 5. 31 : Géométries et maillages utilisés dans le calcul numérique d'écoulement par éléments finis.

Le nombre d'éléments ainsi que le nombre de nœuds de chaque maillage est résumé dans le tableau 5. 4.

Maillage	Nombre d'éléments	Nombre de nœuds
90°	3143	1668
45°	4076	2135
30°	2070	1120
CD	3600	1917

Tab. 5. 4 : Paramètres des quatre géométries de maillage utilisées.

Enfin, les conditions aux limites imposées sont telles que la vitesse est nulle aux bords de la filière. De plus, on impose un écoulement de type Poiseuille en entrée et en sortie de filière.

V. 3. 4. Simulation numérique obtenue pour des conditions d'écoulement stables

❖ Confrontation des résultats expérimentaux et numériques

Sur les figures suivantes sont présentés des résultats mesurés ou calculés dans des conditions stables d'écoulement, pour un débit réduit de 20 s^{-1} . Il s'agit d'un taux de cisaillement apparent pour lequel aucune instabilité n'est observée, même dans le cas le plus critique du convergent à contraction brusque.

La figure suivante présente, dans le cas de la contraction brusque, les isovaleurs de la première différence de contraintes principales confrontées au cliché issu de la biréfringence d'écoulement.

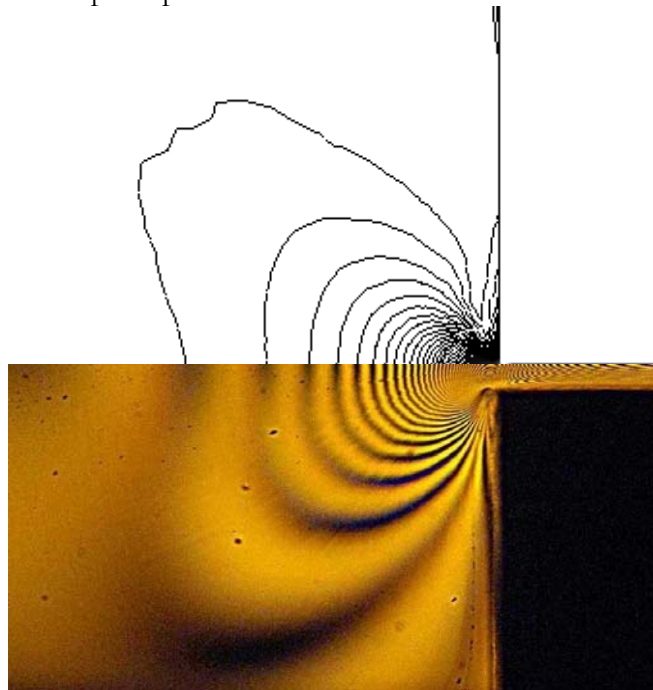


Fig. 5. 32 : Comparaison entre un cliché de biréfringence expérimental et les isovaleurs de DCP obtenues par le calcul, à 180°C ($\dot{\gamma}_{app} = 20 \text{ s}^{-1}$, $L/H = 20.75$, $H = 1.0 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$).

Nous avons utilisé un coefficient de Brewster C de $3.2 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{N}^{-1}$ pour construire le cliché de biréfringence numérique, de façon à l'ajuster au mieux au cliché expérimental et à pouvoir les comparer qualitativement.

Un bon accord qualitatif est obtenu entre la solution numérique et l'expérimentation, dans le réservoir amont. La forme des isochromes numériques y est qualitativement proche de

l'expérience. Il s'agit du siège de l'instabilité et de la zone d'écoulement à laquelle nous nous intéresserons tout particulièrement, tout au long de ce paragraphe.

Par ailleurs, sont présentés, sur les figures 5. 33, les clichés expérimentaux et numériques relatifs au convergent de demi-angle 30° ainsi qu'au convergent doux.

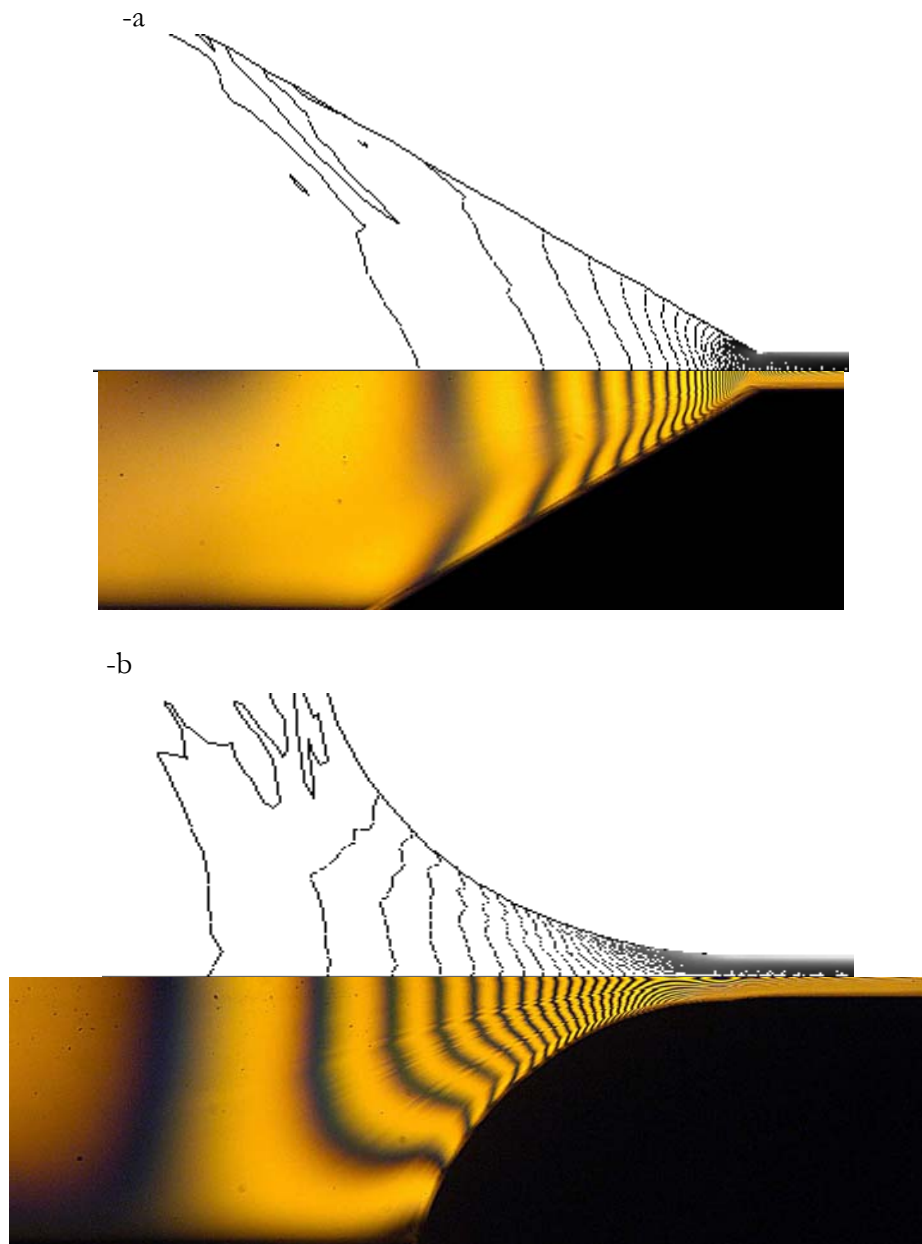


Fig. 5. 33 : Comparaison entre un cliché de biréfringence expérimental et les isovaleurs de DCP obtenues par la simulation numérique en éléments finis, pour un taux de cisaillement apparent de 20 s^{-1} , à 180°C , dans le cas d'un convergent de demi-angle 30° (a) et d'un convergent doux (b) ($L/H = 20.75$ et $H = 1.0 \text{ mm}$).

Les coefficients optiques C prennent respectivement les valeurs de 2.1 et $2.05 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{N}^{-1}$ pour le cliché 5. 33. a et 5. 33. b.

On remarque que les isovaleurs de DCP sont assez mal représentées pour des positions situées très en amont de la contraction, pour lesquelles le maillage est moins raffiné.

Précisons toutefois que cette comparaison est purement qualitative et reste tout à fait correcte dans les trois cas présentés.

La figure 5. 34 présente une comparaison plus quantitative dans le cas de la contraction brusque. En effet, nous avons tracé la variation de la première différence de contraintes normales $\sigma_{xx} - \sigma_{yy}$, le long de l'axe de symétrie.

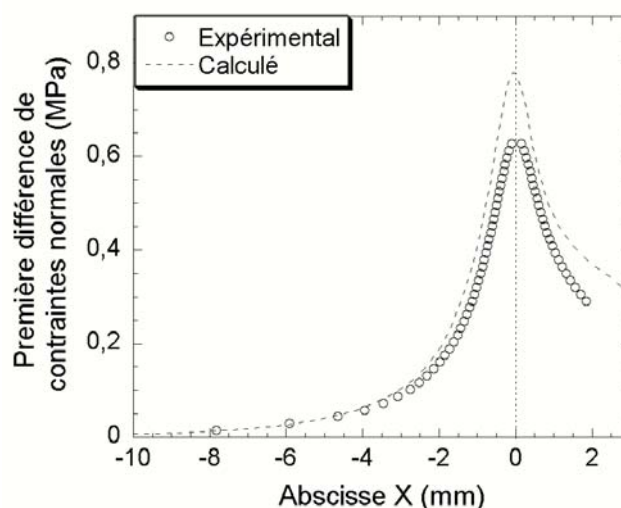


Fig. 5. 34: Variation de la première différence de contraintes normales $\sigma_{xx} - \sigma_{yy}$ mesurée en biréfringence d'écoulement et calculée numériquement, à 180 °C ($\dot{\gamma}_{app} = 20 \text{ s}^{-1}$, $L/H = 20.75$, $H = 1.0 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$).

On remarque que les courbures obtenues par le calcul viscoélastique et par l'expérience sont très comparables. L'ajustement des maximums atteints à la contraction n'est pas parfait mais peut partiellement s'expliquer par le choix du coefficient de Brewster C dont la valeur a été estimée à partir de la littérature. En effet, nous n'avons pu disposer de l'équipement nécessaire à la mesure d'un tel coefficient.

Malgré tout, pour superposer parfaitement les courbes, on remarque que l'on peut utiliser un coefficient de Brewster de 3.2 au lieu de la valeur de $4 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{N}^{-1}$ généralement fournie par la littérature. La figure 5. 35 présente les résultats obtenus dans le cas du calcul viscoélastique, en ajustant ainsi le coefficient optique.

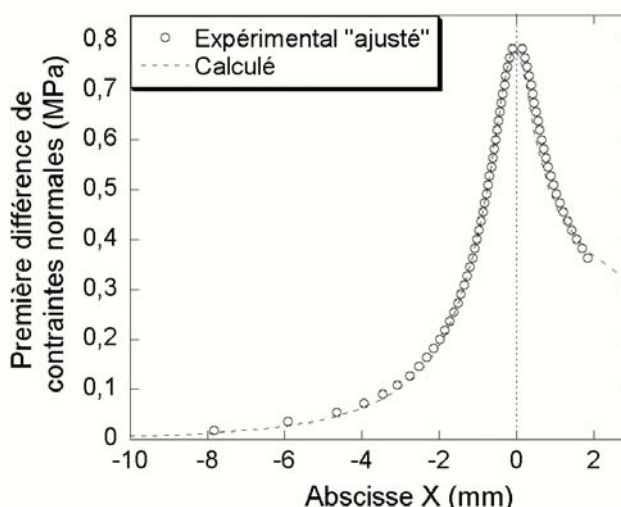


Fig. 5. 35: Variation de la première différence de contraintes normales $\sigma_{xx} - \sigma_{yy}$ mesurée en biréfringence d'écoulement (avec un coefficient de Brewster ajusté au calcul) et calculée numériquement, à 180 °C ($\dot{\gamma}_{app} = 20 \text{ s}^{-1}$, $L/H = 20.75$, $H = 1.0 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$).

On peut observer que la superposition est particulièrement correcte, en amont mais aussi en aval de la contraction.

Le cas des deux autres géométries de convergents (30° et convergent doux) est présenté à la figure 5. 36, avec des données expérimentales ajustées ou non.

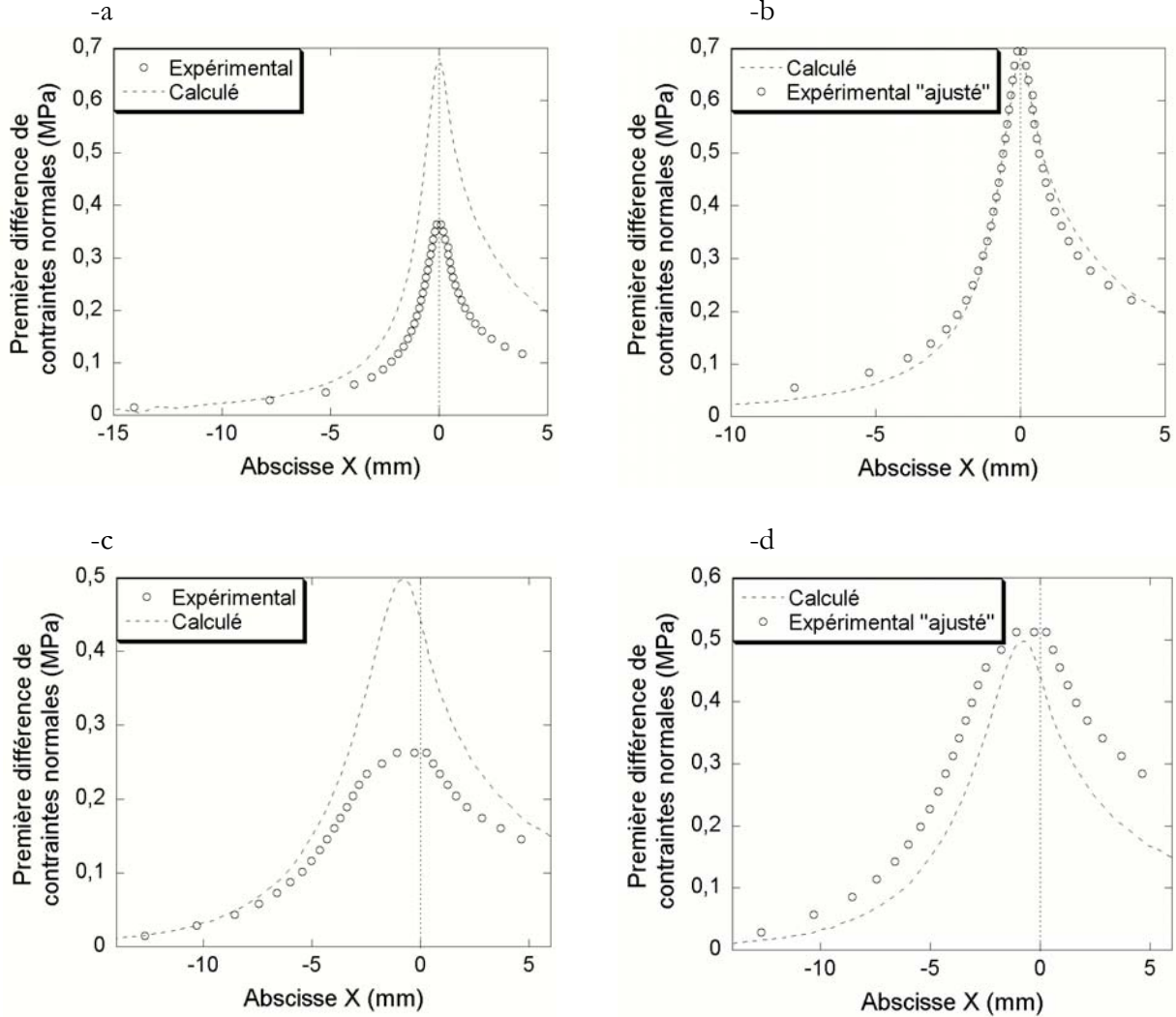


Fig. 5. 36 : Variation de la première différence de contraintes normales $\sigma_{xx} - \sigma_{yy}$ mesurée en biréfringence d'écoulement et calculée par la simulation numérique en éléments finis, pour un taux de cisaillement apparent de 20 s^{-1} , à 180°C dans le cas d'un convergent de demi-angle 30° (a et b) et d'un convergent doux (c et d) ($L/H = 20.75$, $\alpha = 30^\circ$ et $H = 1.0 \text{ mm}$). Les figures (b) et (d) sont relatives à des données expérimentales ajustées au calcul.

Le coefficient optique C possède une valeur de $4 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{N}^{-1}$ pour les figures 5. 36. a et 5. 36. c contre 2.1 et $2.05 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{N}^{-1}$ sur les figures 5. 36. b et 5. 36. d associées respectivement au convergent 30° et au convergent doux. Avec ces valeurs, on tend à s'éloigner des données fournies par la littérature, de façon plus conséquente que dans le cas de la contraction brusque.

Chacun des deux cas montre que le modèle viscoélastique ne décrit pas parfaitement la variation de la DCN le long de l'axe de symétrie. Le convergent de demi-angle 30° présente des résultats numériques qui décrivent la courbure associée à la variation de DCN de façon légèrement moins précise (particulièrement très en amont de la contraction) que dans le cas de la contraction brusque, même avec un coefficient de Brewster ajusté. Le convergent doux donne des résultats

numériques très approximatifs par rapport à l'expérimentation. Par conséquent, les résultats numériques présentés dans cette étude sont à considérer avec précaution, tout en gardant à l'esprit qu'il semble exister une surestimation des contraintes ainsi qu'un accord très qualitatif avec l'expérience notamment dans l'établissement et la relaxation des contraintes, autour de la contraction.

On s'intéresse, sur la figure 5. 37, aux profils de vitesse $V_x(X)$ mesuré et calculé. Il s'agit de résultats issus de la simulation numérique, comparés aux mesures effectuées en vélocimétrie laser-Doppler.

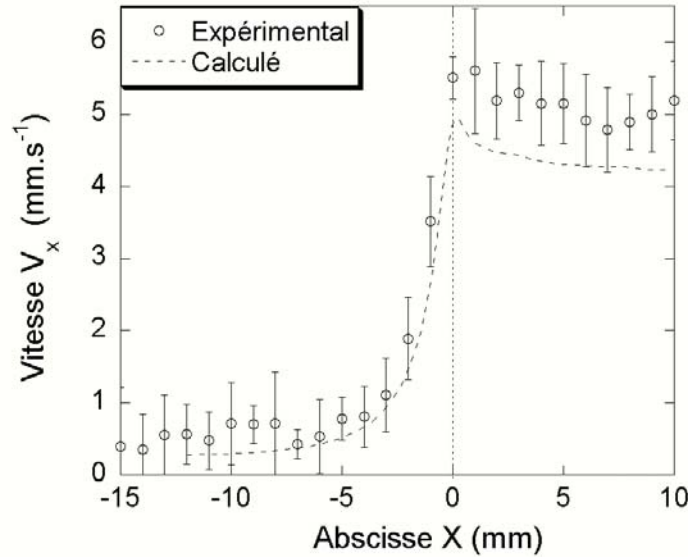


Fig. 5. 37 : Profil de vitesse $V_x(X)$ obtenu par mesure expérimentale et par le calcul, à 180 °C ($\dot{\gamma}_{app} = 20$ s⁻¹, $L/H = 20.75$, $H = 1.0$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

Rappelons que la précision de la mesure menée en vélocimétrie laser-Doppler est accrue si l'on étudie des vitesses d'écoulement élevées. Ceci explique les dispersions expérimentales notables que l'on a représentées sur le graphique. La figure 5. 37 montre que la simulation de l'écoulement en 2D ne nous permet pas de rendre compte parfaitement de la vitesse mesurée, notamment en aval de la contraction. En effet, la géométrie d'écoulement que nous avons utilisée ($W = 10.1$ mm et $H = 1.0$ mm) suppose des effets de bord non négligeables, qui rendent l'écoulement tridimensionnel. C'est la raison pour laquelle les courbes calculées par éléments finis sous-estiment la vitesse réelle du fluide au centre de son écoulement. Par contre, le calcul viscoélastique semble relativement réaliste, dans le sens où il traduit assez correctement l'accélération et la décélération du fluide autour de la contraction. A son approche de l'orifice, le fluide commence à être accéléré pour une abscisse X située à 7 mm environ de la contraction. L'accélération est alors anticipée et peu brutale, comme le décrit aussi l'expérience. Enfin, le calcul viscoélastique présente un overshoot de vitesse de l'ordre de 10 % en aval de la contraction. Il s'agit du même ordre de grandeur que celui mesuré par vélocimétrie laser-Doppler.

La variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$ le long de l'axe de symétrie est représentée sur la figure 5. 38. On remarque que le calcul viscoélastique rend bien compte du comportement du fluide autour de la contraction.

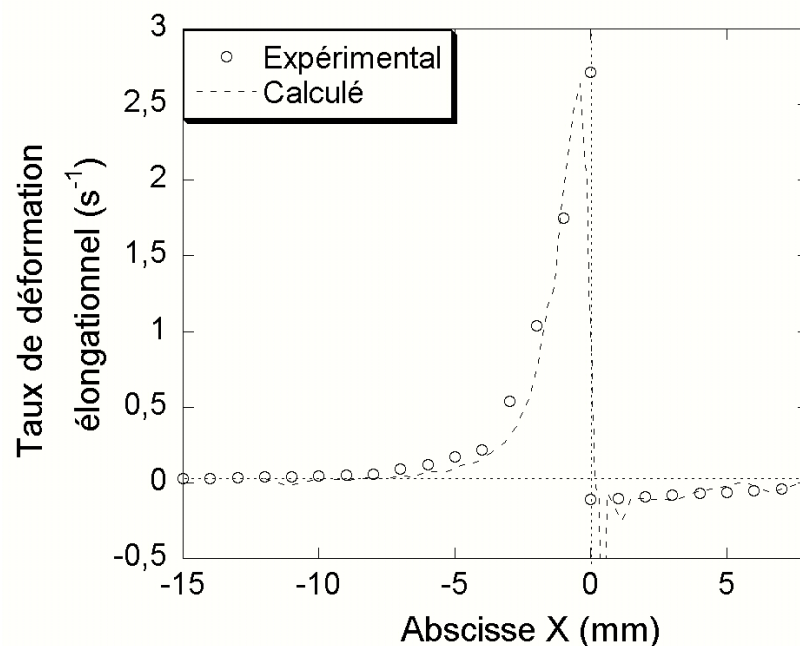


Fig. 5. 38 : Variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$ obtenue par la mesure de vitesses en vélocimétrie laser-Doppler et par le calcul, à 180 °C ($\dot{\gamma}_{app} = 20 \text{ s}^{-1}$, $L/H = 20.75$, $H = 1.0 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$).

Dans le cas des profils calculés, le maximum du taux de déformation est atteint légèrement en amont de la contraction, à 0.3 mm (la mesure expérimentale n'a été effectuée que pour les points d'abscisse $X = -1$ et $X = 0 \text{ mm}$). Les vitesses de déformation maximales sont très semblables : en comparaison à l'expérience menée, il semble que les calculs numériques soient valides pour décrire qualitativement l'accélération du fluide à l'approche de l'orifice.

Enfin, nous avons comparé les champs vectoriels de vitesses issus de la simulation numérique et de la mesure directe par vélocimétrie laser-Doppler. La comparaison fait l'objet de la figure 5. 39.

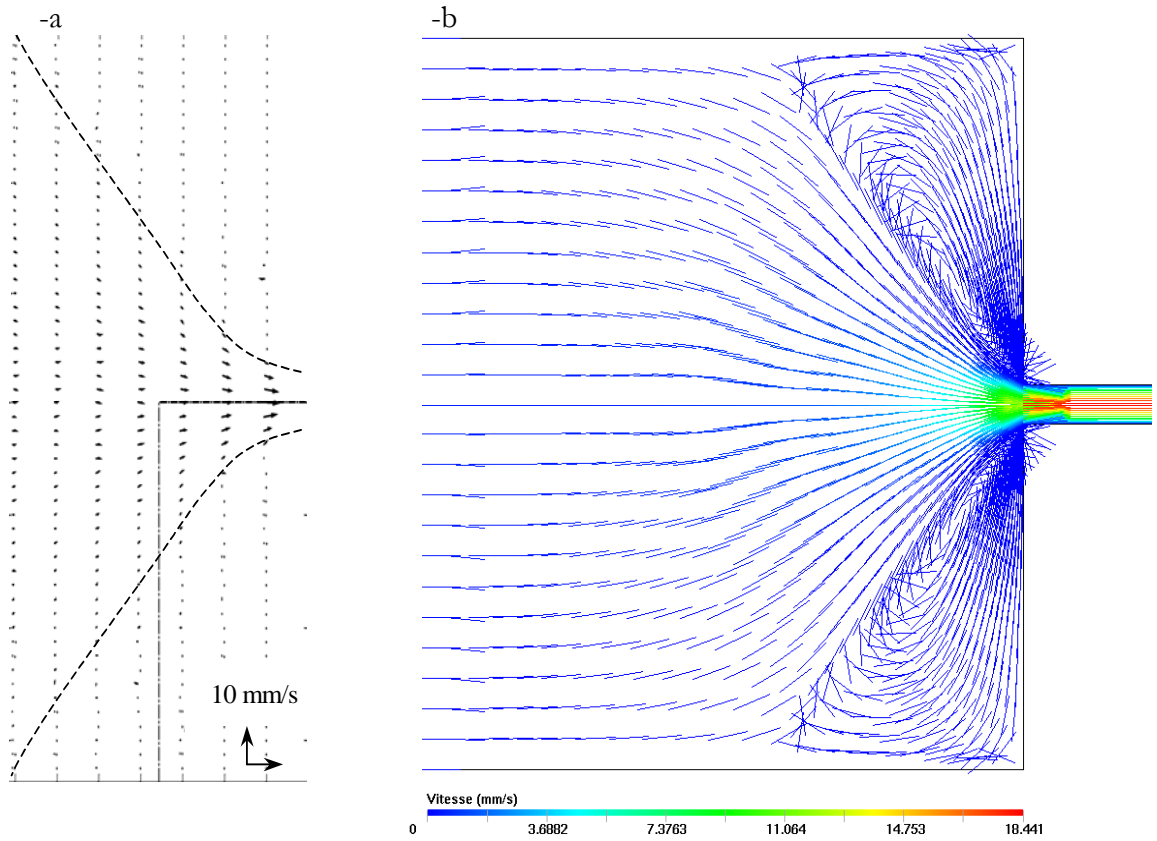


Fig. 5. 39 : Comparaison du champs de vitesse expérimental mesuré par vélocimétrie laser-Doppler ($\dot{\gamma}_{app} = 42 \text{ s}^{-1}$) (a) et du champs de vitesse calculé numériquement ($\dot{\gamma}_{app} = 70 \text{ s}^{-1}$) (b), à 180 °C ($L/H = 20.75$, $H = 1.0 \text{ mm}$ et $\alpha = 90^\circ$).

Le champs vectoriel numérique a été représenté avec des vecteurs vitesse, dont la longueur est normée. Les échelles dimensionnelles des figures présentées sont telles que l'entrefer H étudié mesure 1 mm.

L'expérience a été réalisée pour un taux de cisaillement de 42 s^{-1} . Précisons que nous avons préalablement observé au chapitre IV que la forme de l'écoulement amont et en particulier l'angle qui existe entre l'écoulement principal et l'écoulement secondaire n'évolue pas avec le taux de cisaillement apparent. En outre, la comparaison effectuée a simplement pour but de décrire qualitativement la forme de l'écoulement amont proposée par le modèle viscoélastique. Le modèle viscoélastique donne des vortex de taille non négligeable, formant un angle d'approximativement 100° avec l'écoulement principal, ce qui est en adéquation avec les observations expérimentales.

Tous ces résultats semblent rendre valides les modélisations numériques adoptées, au moins d'un point de vue qualitatif. Même si la variation de la DCN le long de l'axe de symétrie n'est pas quantitativement décrite par le calcul viscoélastique, les résultats numériques demeurent pertinents et peuvent rendre qualitativement compte du comportement du polymère utilisé, lors de son écoulement à travers une contraction.

❖ Influence de la géométrie du convergent sur la première différence de contraintes normales $\sigma_{xx} - \sigma_{yy}$

Sur la figure 5. 40, nous avons comparé, pour trois géométries de convergents et pour un même taux de cisaillement apparent de 20 s^{-1} , la variation de $\sigma_{xx} - \sigma_{yy}$, selon l'axe de symétrie du réservoir.

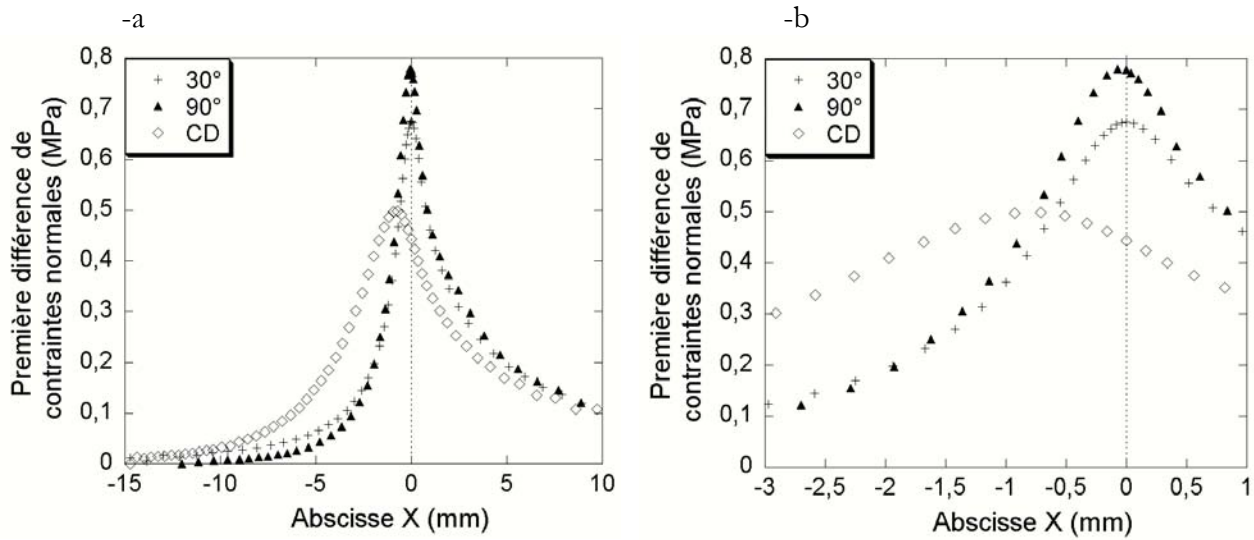


Fig. 5. 40 : Variation la première différence de contraintes normales $\sigma_{xx} - \sigma_{yy}$ obtenue par le calcul, pour trois géométries de convergents, à 180 °C ($\dot{\gamma}_{app} = 20 \text{ s}^{-1}$, $L/H = 20.75$ et $H = 1.0 \text{ mm}$). La figure (a) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (b).

On remarque que la valeur maximale de la DCN est d'autant plus élevée que le convergent utilisé possède une forme « sévère ». De plus, la forme des courbes obtenues diffère d'une géométrie à l'autre. Le convergent doux voit sa DCN commencer à augmenter pour des positions plus en amont de la contraction que pour les convergents classiques. La pente de la courbe est moins élevée et le maximum est atteint pour une abscisse X de -2 mm. La figure 5. 2 obtenue en biréfringence d'écoulement présente qualitativement les mêmes caractéristiques qu'évoquées précédemment (les valeurs numériques de la DCN sont néanmoins surestimées par rapport à l'expérimentation, comme nous l'avons observé précédemment).

❖ Influence de la géométrie du convergent sur le taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$

La figure 5. 41 compare la variation des vitesses de déformation $\dot{\epsilon}_{xx}$, le long de l'axe de symétrie du réservoir.

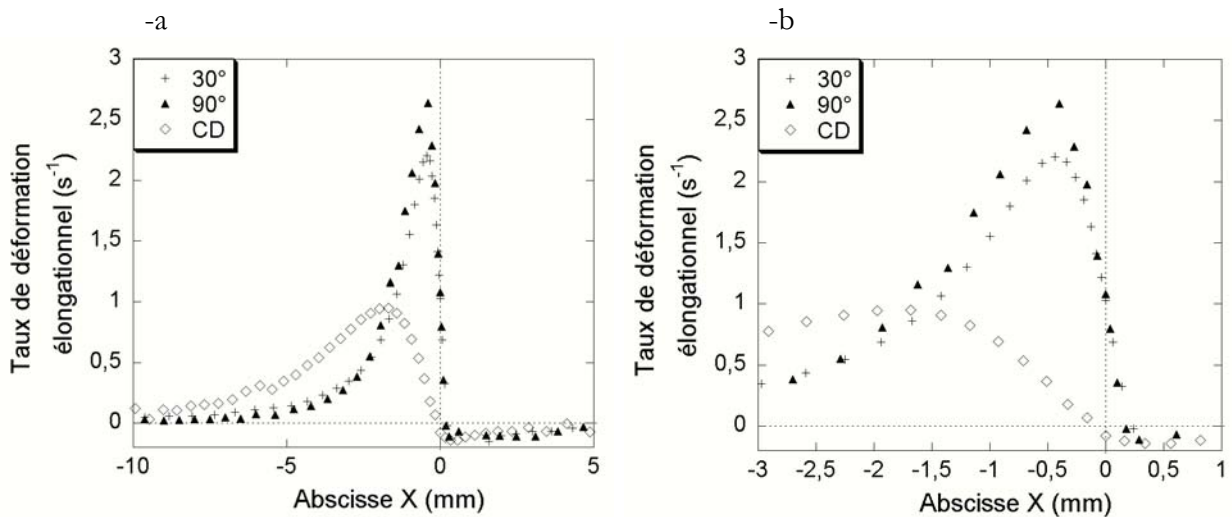


Fig. 5. 41 : Variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$ obtenue par le calcul, pour trois géométries de convergents, à 180 °C ($\dot{\gamma}_{app} = 20 \text{ s}^{-1}$, $L/H = 20.75$ et $H = 1.0 \text{ mm}$). La figure (a) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (b).

Comme précédemment avec l'étude de la DCN, on parvient à minimiser le taux de déformation élongationnel avec l'utilisation d'un convergent de géométrie « moins sévère ». Le convergent à contraction brusque possède une vitesse de déformation maximale d'environ 2.6 s^{-1} , contre seulement 1 s^{-1} pour le convergent doux. Il s'agit de résultats numériques qui sont qualitativement en accord avec l'expérimentation menée en vélocimétrie laser-Doppler, comme en témoigne la figure 5. 19. a.

V. 3. 5. Simulation numérique obtenue pour des conditions d'écoulement critiques

Cette dernière partie de l'étude vise à caractériser l'écoulement pour les conditions critiques propres à l'apparition du défaut volumique périodique. Seul le cas du convergent doux ne présente pas d'instabilité puisque l'entrefer H étudié mesure 1 mm. Nous avons utilisé pour celui-ci les conditions d'écoulement maximales autorisées sans qu'aucune déstabilisation de l'écoulement d'entrée n'apparaisse. Dans ce cas précis, le taux de cisaillement apparent maximal vaut 1000 s^{-1} .

Nous présentons, à la figure 5. 42, la variation de la DCN obtenue dans les conditions critiques d'initiation de l'instabilité, pour les quatre convergents de filière.

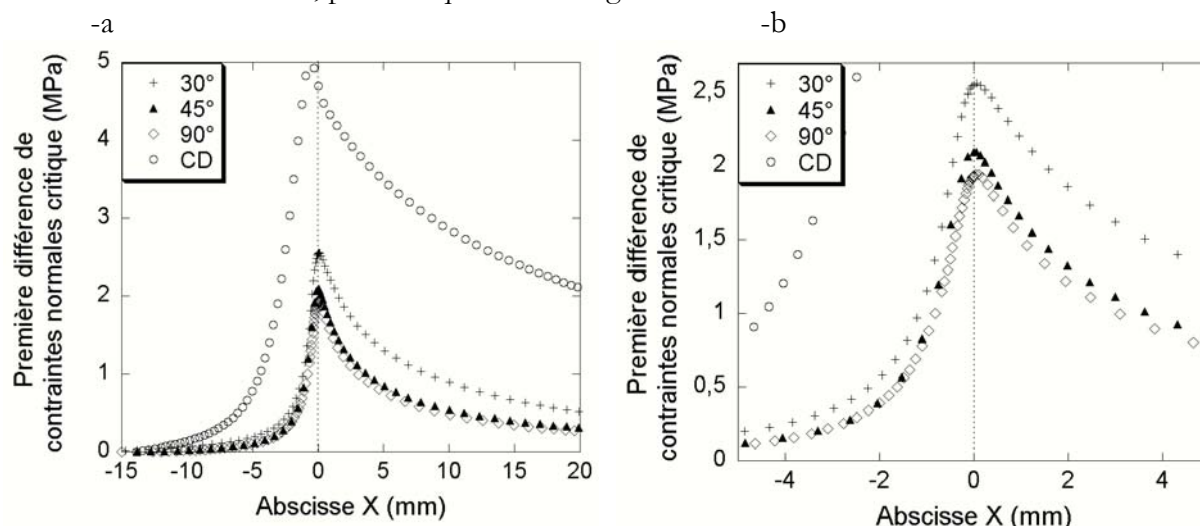


Fig. 5. 42 : Variation la première différence de contraintes normales $\sigma_{xx} - \sigma_{yy}$, dans les conditions critiques d'apparition du défaut (sauf pour le convergent doux), obtenue par le calcul éléments finis, pour les quatre géométries de convergents, à 180 °C ($L/H = 20.75$ et $H = 1.0$ mm). La figure (a) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (b).

On observe clairement sur la figure 5. 42 que la DCN atteinte à la contraction reste du même ordre de grandeur pour les convergents classiques mais demeure très différente pour le convergent doux. Ce dernier présente une valeur maximale de la DCN plus de deux fois supérieure à celle liée au déclenchement de l'instabilité pour les convergents classiques. Pourtant, aucune déstabilisation d'entrée n'est observée dans ces conditions.

De même, on constate, d'après la figure 5. 43, que la vitesse de déformation associée au convergent doux est également bien supérieure à celle nécessaire à l'initiation du défaut, pour les convergents de forme « classique ».

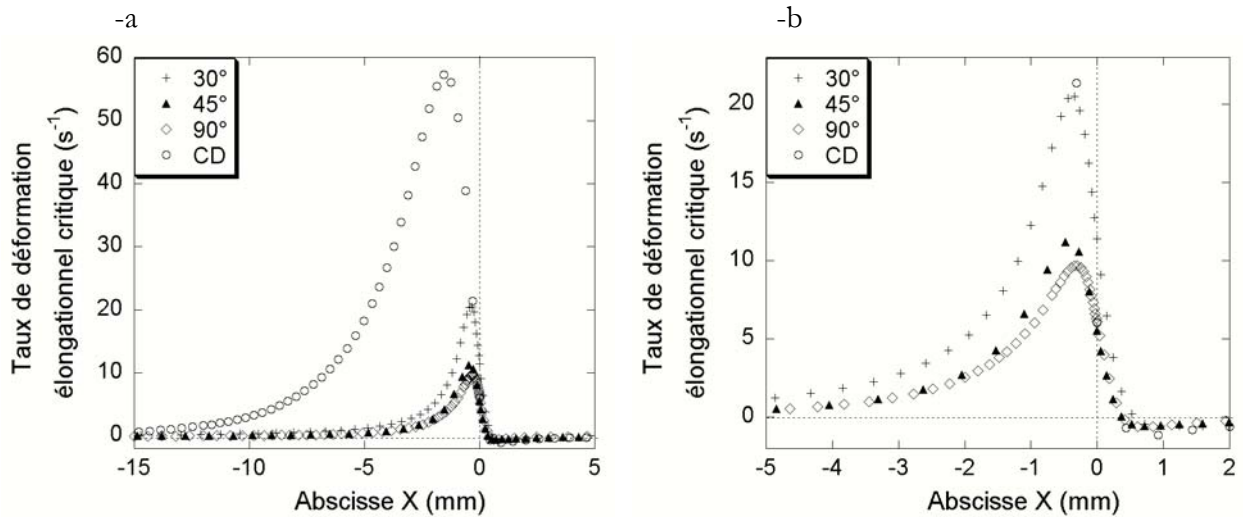


Fig. 5. 43 : Variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$, dans les conditions critiques d'écoulement (sauf pour le convergent doux), obtenue par le calcul éléments finis, pour les quatre géométries de convergents, à 180 °C ($L/H = 20.75$ et $H = 1.0$ mm). La figure (a) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (b).

Alors que les résultats numériques prévoient des vitesses de déformations maximales de 10, 11, 20 et 57 s⁻¹ pour les convergents de demi-angle 90, 45, 30° et pour le convergent doux, l'expérience nous fournissait respectivement les valeurs suivantes : 11, 8, 13 et 23 s⁻¹.

En définitive, l'interprétation des résultats numériques est qualitativement en accord avec les conclusions que nous avons émises grâce à l'expérience. En effet, les figures 5. 9, 5. 24 et 5. 25 avaient montré que la déstabilisation de l'écoulement amont n'était pas exclusivement liée à une valeur critique de la DCN ou de la vitesse de déformation obtenue sur l'axe de symétrie du réservoir. Ces résultats sont largement confirmés par le calcul numérique.

V. 3. 6. Discussion

Au cours de cette étude, nous avons pu remarquer que les paramètres d'écoulement les plus déterminants quant à l'apparition du défaut volumique périodique étaient le rapport de contraction, la température et la forme du convergent. C'est à travers cette discussion que nous tenterons d'explicitier et d'interpréter les conditions d'écoulement nécessaires à la naissance d'une telle instabilité.

Tout d'abord, l'un des résultats expérimentaux les plus convaincants concerne l'étude de l'influence du rapport de contraction pour le PP. En effet, la vélocimétrie laser-Doppler nous apprend que, dans les conditions critiques d'initiation du défaut, la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}_{xx}$ à la contraction varie peu entre les différents rapports de contraction. On peut alors supposer que, pour une forme de convergent donnée, le fluide subisse globalement la même accélération et donc la même histoire de déformation le long de l'axe de symétrie pour atteindre un état de déformation ultime, maximal à la contraction. C'est effectivement ce que nous apprend l'étude en biréfringence d'écoulement. Nous observons, avec trois contractions brusques possédant des rapports de contraction de 36/1, 18/1 ou encore 12/1, que la déstabilisation de l'écoulement d'entrée se met en place pour une même valeur de la première différence de contraintes normales sur l'axe de symétrie. Cette valeur de la DCN, dont le maximum est atteint à la contraction,

traduit une orientation moléculaire critique du fluide, au delà de laquelle le polymère adopte une configuration d'écoulement différente.

Par analogie avec l'étude du rapport de contraction, on peut également s'intéresser à l'influence de la température d'écoulement sur la naissance du défaut. Aucune expérience n'a été menée en biréfringence d'écoulement ou en vélocimétrie laser-Doppler à ce sujet. Néanmoins, les courbes d'écoulement apparentes présentent des similitudes évidentes avec celles obtenues pour divers rapports de contraction, comme rappelé ci-après, toujours dans le cas du PP.

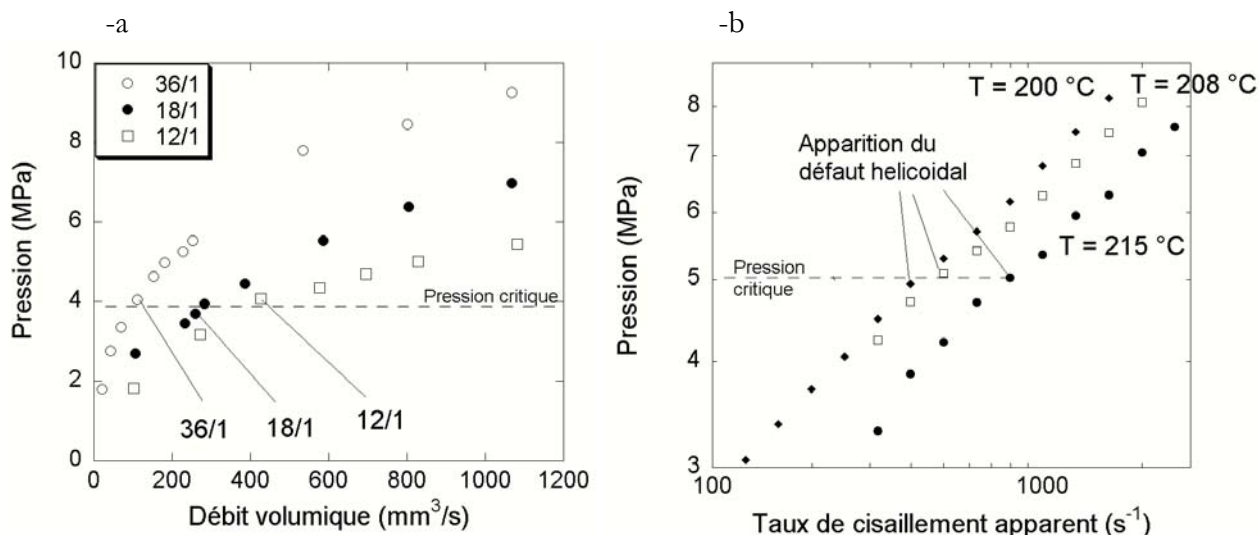


Fig. 5. 44 : Courbes d'écoulement apparentes obtenues avec le PP, en filière plate pour trois rapports de contraction ($L/H = 20.75$ et $\alpha = 90^\circ$) (a) et en rhéométrie capillaire pour trois températures ($D = 0.93$ mm, $L/D = 4$ et $\alpha = 45^\circ$) (b).

D'après la figure 5. 44. b, on peut supposer que, pour une géométrie d'écoulement considérée, les taux de déformation $\dot{\epsilon}_{xx}$ critiques associés à l'apparition du défaut hélicoïdal augmentent avec la température, au même titre que les débits critiques. Même si les valeurs critiques de $\dot{\epsilon}_{xx}$ supposées sont très différentes d'une température à l'autre, l'analyse de Cogswell a montré, au chapitre III, que le taux de déformation elongationnel critique obéissait au principe de superposition en temps/température. En outre, on imagine que le temps de réponse du matériau viscoélastique à la sollicitation imposée à l'entrée de la filière est d'autant plus court que la température est élevée. En moyennant ce temps de réponse court à la vitesse de déformation élevée, il est possible de déterminer, dans les conditions d'écoulement critiques, un terme de la forme $\dot{\epsilon} dt$ équivalent à un nombre de Deborah De critique, indépendant de la température considérée.

En effet, alors que les débits d'écoulement critiques diminuent avec la « sévérité d'écoulement » imposée (faible température d'écoulement, rapport de contraction élevé), la pression mesurée régnant en amont de la contraction reste sensiblement la même, dans les deux cas présentés figure 5. 44. a et 5. 44. b. Il serait donc assez peu surprenant d'observer, comme l'a montré l'étude du rapport de contraction, des niveaux critiques de DCN très comparables, entre les différentes températures imposées. Cette analyse, certes très qualitative, semble montrer que non seulement l'initiation du défaut dépend d'un degré d'orientation moléculaire donné mais aussi de l'histoire de cette déformation moléculaire (macroscopiquement exprimée en terme d'accélération ou de vitesse de déformation), régie par le principe de superposition en temps/température. C'est en cela que l'instabilité étudiée apparaît comme étroitement liée à la viscoélasticité du matériau puisque rappelons que les fluides à comportement purement newtonien ne présentent pas ce genre de défaut. Rappelons par ailleurs que les caractéristiques

propres au développement de l'instabilité sont l'expression même du caractère viscoélastique du polymère puisque la fréquence du défaut obéit également au principe de superposition en temps/température.

Enfin, le dernier point important de l'étude concerne la forme du convergent utilisé.

Dans le cas de la contraction brusque et d'après les mesures réalisées en vélocimétrie laser-Doppler, on observe des vortex partant du bord de la contraction et formant un angle de 100° avec l'écoulement principal. Cette dernière valeur reste très peu différente de l'angle de 90° , imposé à l'écoulement principal par le convergent de demi-angle 45° . Finalement, on peut concevoir le fait que les recirculations observées puissent jouer le rôle de « convergent », de demi-angle 50° . Les débits réduits critiques associés à la contraction brusque et au convergent de demi-angle 45° sont respectivement de 70 et 80 s^{-1} . Des valeurs aussi comparables semblent témoigner d'une similitude de comportement de l'écoulement dans les deux convergents.

Le PP tend à confirmer cette hypothèse. D'après la littérature [20] et d'après les expériences que nous avons menées en biréfringence d'écoulement, le polypropylène présente des recirculations de taille très restreinte, voire inexistantes, lors de son écoulement dans une contraction brusque. L'angle formé par l'écoulement principal reste donc très élevé (aux alentours de 180°), notamment par rapport à l'angle de 90° que nous impose un convergent de demi-angle 45° . Ceci pourrait expliquer les conditions d'écoulement critiques très différentes nécessaires au déclenchement du défaut, dans le cas des convergents de demi-angle 45 et 90° . En effet, dans le cas du convergent de demi-angle 45° , nous ne parvenons pas à atteindre le déclenchement du défaut ($\dot{\gamma}_{app} = 750 \text{ s}^{-1}$), contrairement au cas de la contraction brusque ($\dot{\gamma}_{app} = 155 \text{ s}^{-1}$).

Ces dernières remarques montrent que, quelle que soit la nature du convergent considéré (parois de filière ou polymère en recirculation), le déclenchement du défaut est directement lié à la sévérité de la forme d'entrée imposée. Nous observons que non seulement les débits d'écoulement critiques diminuent avec la sévérité de l'entrée de filière mais que les pressions critiques mesurées diminuent également, contrairement aux deux paramètres présentés précédemment (température et rapport de contraction). Le convergent doux présente des débits et pressions critiques particulièrement plus élevés que tous les autres convergents.

De même, il est intéressant d'observer que la valeur maximale de la première différence de contraintes normales atteinte dans les conditions critiques diminue avec la sévérité de la forme du convergent. L'étude menée en biréfringence d'écoulement avec le PP montre qu'avec l'utilisation d'un convergent 45° , la DCN peut atteindre des valeurs nettement supérieures à celles relevées dans les conditions d'écoulement critiques, avec une contraction brusque.

La simulation numérique par éléments finis conforte cette observation dans le cas du PS 1. Les valeurs de la DCN considérées dans les conditions de déclenchement de l'instabilité sont d'autant plus élevées que la forme du convergent est peu sévère.

Ces résultats montrent que la déstabilisation de l'écoulement principal ne repose pas uniquement sur un état critique de l'orientation moléculaire du matériau mais aussi sur l'histoire de la déformation qui a précédé cette configuration critique des macromolécules. En effet, en jouant sur l'angle du convergent, ou encore en utilisant un convergent doux, on note des comportements très différents, notamment dans la variation du taux de déformation le long de l'axe de symétrie.

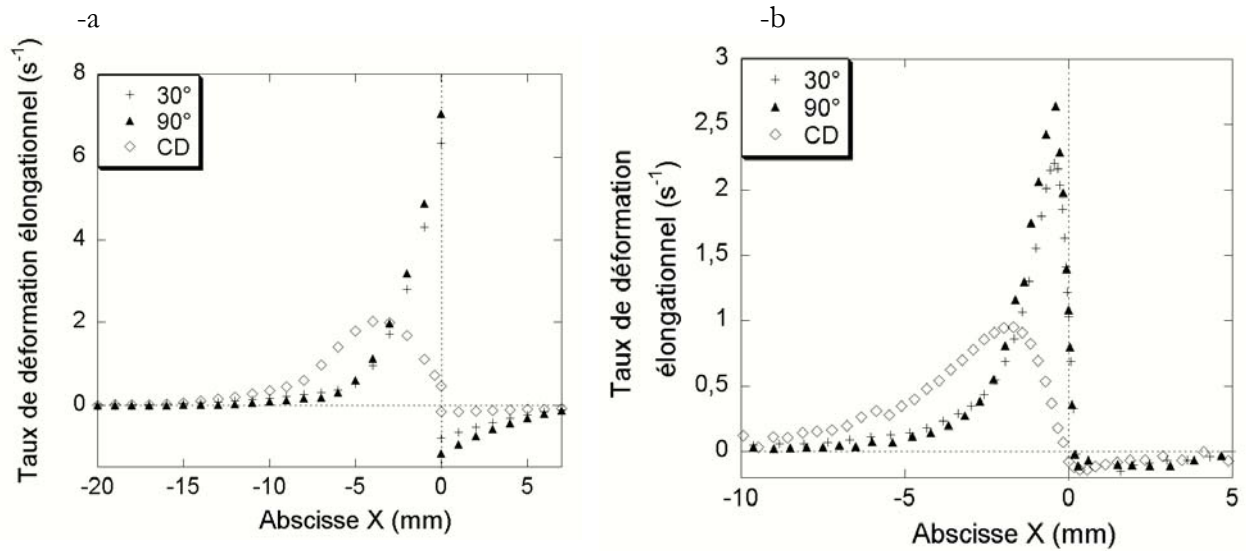


Fig. 5. 45 : Variation du taux de déformation élongationnel $\dot{\epsilon}_{xx}$ sur l'axe de symétrie pour différentes géométries de convergent, obtenue par la mesure ($\dot{\gamma}_{app} = 51 s^{-1}$) (a) et par le calcul numérique ($\dot{\gamma}_{app} = 20 s^{-1}$) (b) ($L/H = 20.75$ et $H = 1.0$ mm).

Les convergents de forme « classique » présentent globalement la même allure de courbe avec néanmoins une anticipation de l'accélération par rapport à l'orifice plus prononcée avec le convergent 30°. Par rapport à ces deux géométries, le convergent doux apparaît très différent puisque non seulement l'augmentation de $\dot{\epsilon}_{xx}$ s'opère pour des abscisses plus en amont de la contraction mais aussi de façon beaucoup plus progressive (la pente de $\dot{\epsilon}_{xx}(X)$ est plus faible).

Les figures 5. 46 présentent la répartition de la première différence de contraintes principales dans les quatre géométries de convergent étudiées, considérées dans les conditions critiques d'apparition de l'instabilité.

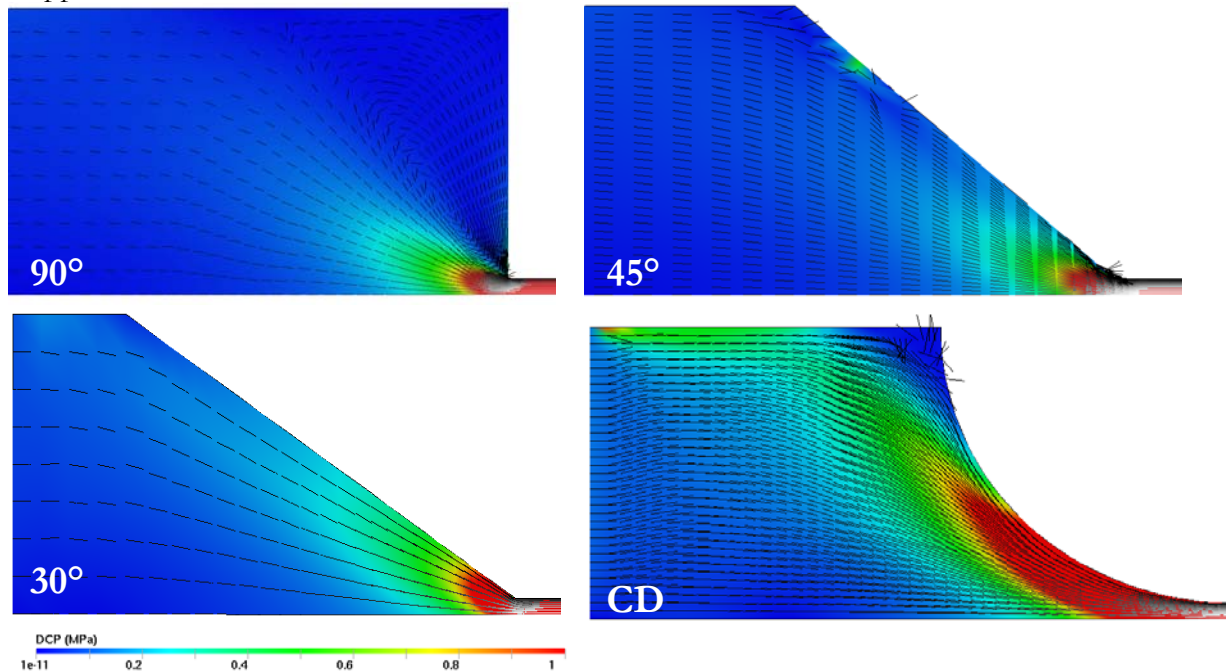


Fig. 5. 46 : Champs de répartition de la DCP, dans les conditions critiques de déclenchement du défaut (sauf pour le convergent doux), pour les quatre géométries de convergent, à 180 °C ($L/H = 20.75$ et $H = 1.0$ mm).

Les champs de répartition de la DCP ont été représentés avec la même échelle d'un convergent à l'autre. Les zones apparaissant de couleur grise sur les clichés s'expliquent par la concentration de vecteurs vitesse trop importante, dans le confinement de la contraction.

Le maximum de la DCP est atteint dans la région de la contraction, représentée par la couleur rouge sur la figure, région où les sollicitations élongationnelles sont les plus importantes. Si l'on s'intéresse au prolongement de cette zone en amont de la contraction (couleur verte et bleu clair), on remarque que cette zone s'oriente non pas selon l'axe de symétrie du réservoir mais plutôt selon les lignes de courant longeant les parois du convergent ou encore la délimitation des vortex dans le cas de la contraction brusque. On observe très nettement dans le cas du convergent doux que cette zone est particulièrement développée, témoignant d'une forte orientation moléculaire du fluide dans le prolongement des lignes de courant situées près des parois du convergent, particulièrement en amont de la contraction. A l'inverse, les convergents classiques présentent, à la déstabilisation de l'écoulement principal, une concentration de la DCP d'autant plus restreinte autour de la contraction que le convergent est sévère.

Ces résultats suggèrent que la déstabilisation de l'écoulement principal puisse être un phénomène complexe, se développant également en fonction de l'histoire de la déformation du fluide le long de ces lignes de courant, notamment le long des parois du convergent.

Ainsi, à notre sens, l'apparition de l'instabilité ne peut être uniquement caractérisée par une orientation moléculaire critique du fluide à la contraction et se traduit par le couplage fort qui existe macroscopiquement entre déformation ε_{xx} et vitesse de déformation $\dot{\varepsilon}_{xx}$. En définitive, les résultats expérimentaux et numériques, notamment associés à l'écoulement dans le convergent doux, nous apprennent que le déclenchement de l'instabilité dépend de façon évidente de l'histoire de la déformation à laquelle est soumis le fluide lors de son transit dans la région d'entrée de la filière. En effet, l'utilisation d'un tel convergent rappelle tout à fait l'influence de filtres placés en amont de l'orifice [38, 44]. Ces derniers permettraient en l'occurrence de désenchevêtrer artificiellement les chaînes et de modifier prématurément l'histoire de la déformation que subit le matériau à son approche de la contraction.

V. 4. Comportement singulier du PS 2 en écoulement axisymétrique

Le chapitre III a mis en évidence l'existence d'une instabilité de type hélicoïdale en rhéométrie capillaire, pour le PS 1, le PP et le PS 2 (avec l'utilisation de filières de demi-angle de convergent 45° exclusivement). Cette instabilité a, par ailleurs, été caractérisée en filière plate dans le cas du PS 1 et du PP. D'un écoulement axisymétrique à un écoulement parallélépipédique, des similitudes ont été observées (thermo-dépendance, influence de la forme du convergent et du rapport de contraction sur l'apparition du défaut...). De même, d'un polymère à l'autre, l'instabilité possède majoritairement les mêmes caractéristiques. Cette dernière partie de l'étude présente le comportement observé lors de l'écoulement axisymétrique du PS 2 à travers plusieurs filières cylindriques, à contraction brusque. Contre toute attente, nous avons constaté que le PS 2 ne présente pas le défaut hélicoïdal classiquement observé et décrit à travers les chapitres III et IV. Il s'agit de résultats très surprenants qui remettent en jeu les conclusions précédentes et qui démontrent le fait que le déclenchement et le développement de l'instabilité hélicoïdale ne sont visiblement pas toujours prévisibles.

V. 4. 1. Description du défaut observé

Comme nous l'avons montré au cours du chapitre III, le comportement du PS 2, étudié en écoulement axisymétrique, avec l'utilisation d'une filière d'entrée conique ($\alpha = 45^\circ$), a conforté les conclusions obtenues lors de l'étude du PS 1. Le développement du défaut hélicoïdal puis

chaotique des deux polystyrènes possède, dans cette configuration géométrique, les mêmes propriétés. Les taux de cisaillement apparents critiques relatifs à chacun des deux polymères restaient néanmoins très différents et s'élevaient à 20 et 1500 s⁻¹ pour le PS 1 et le PS 2, respectivement.

Le comportement du PS 2 s'est toutefois avéré très étonnant avec l'utilisation de filières à contraction brusque. Le défaut observé possède en effet une morphologie très différente du défaut hélicoïdal décrit au chapitre III. Il ressemble plutôt à un défaut « volumique oscillant ». La photo 5. 47 présente un échantillon des extrudats obtenus.

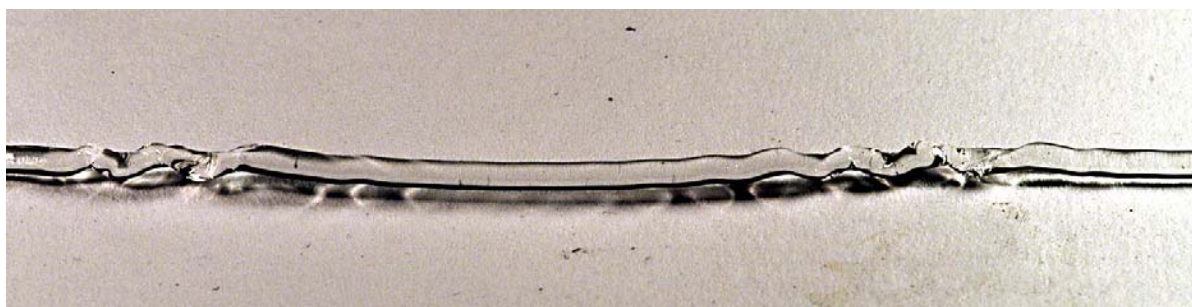


Fig. 5. 47 : Aspect d'extrudat du PS 2, obtenu avec une filière à contraction brusque, à 180 °C ($D = 0.93$ mm, $L/D = 4$ et $\dot{\gamma}_{app} = 7079$ s⁻¹).

Ainsi, au delà d'un débit d'écoulement critique, l'extrudat initialement lisse présente une alternance périodique entre zones lisses et zones présentant un défaut hélicoïdal. Pour des débits plus élevés, on assiste, comme observé au chapitre III, au développement du défaut chaotique « classique », qui ne possède plus aucune organisation dans sa morphologie.

Le défaut oscillant « classique », généralement décrit dans la littérature [7, 17, 18], présente le plus souvent une alternance entre des zones lisses et affectées d'un défaut surfacique de type « peau de requin ». Cette instabilité est propre à la catégorie des polymères « de type linéaire ».

A notre connaissance, l'alternance d'aspect « lisse/défaut hélicoïdal » n'a jamais été observée dans l'extrusion de polymères de type branché, sauf très récemment par Den Doelder et Koopmans sur des polyoléfines branchées [65]. En outre, les courbes d'écoulements apparentes obtenues avec ce polystyrène présentent des singularités que nous n'avons jamais rencontrées au sein de la littérature.

V. 4. 2. Courbes d'écoulement apparentes, pour différents rapports L/D

Rappelons que les filières à contraction brusque ($\alpha = 90^\circ$) sont au nombre de trois ($L/D = 4, 8$ ou 16) et possèdent un diamètre D de 0.93 mm.

Sur la figure 5. 48, sont tracées les courbes d'écoulement apparentes, pour trois rapports de longueur L/D .

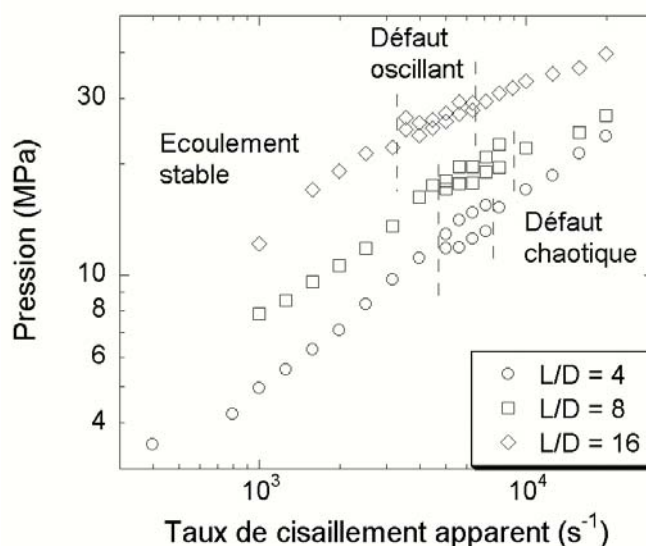


Fig. 5. 48 : Courbes d'écoulement apparentes du PS 2, pour différents rapports L/D , à 180 °C ($D = 0.93$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

On constate que chaque courbe d'écoulement est discontinue et peut être décrite comme la succession de deux branches I et II rectilignes, séparées par une zone d'écoulement « oscillante ».

En effet, au cours du développement du défaut que nous appellerons « instabilité volumique oscillante », le signal de pression présente des oscillations périodiques, possédant une forme « en dents de scie ». Sur la figure 5. 48, les deux points relevés pour chaque débit réduit dans la « zone oscillante » correspondent aux extremas du signal de pression mesuré. La branche I est constituée des points de la courbe relatifs à l'écoulement stable et se prolonge avec les points correspondant plutôt aux sommets des signaux de pression dans la zone d'écoulement oscillant. La branche II est constituée des points de la courbe relatifs à l'écoulement chaotique et se prolonge plus ou moins pour les points correspondant aux minimas des signaux de pression dans la zone oscillante.

L'amplitude de ces oscillations peut atteindre 1.0 à 2.0 MPa, pour chacune des courbes obtenues, comme illustré sur la figure 5. 49.

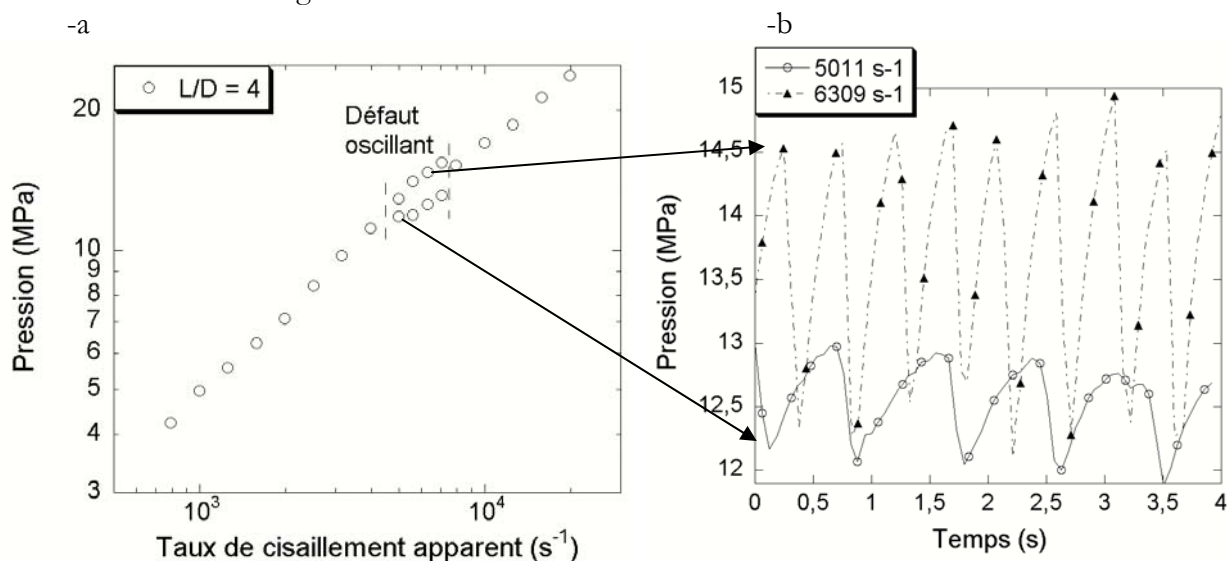


Fig. 5. 49 : Courbe d'écoulement apparente (a) et signaux de pression associés à la zone oscillante (b), à 180 °C ($D = 0.93$ mm, $L/D = 4$ et $\alpha = 90^\circ$).

Il apparaît, d'après les deux figures présentées, que les courbes d'écoulement apparentes restent différentes de celles obtenues pour un défaut oscillant « classique ». En effet, les valeurs extrémales de pression sont généralement identiques pour toute la plage de débit où apparaît le défaut oscillant. La figure 5. 49. b montre que, dans notre cas, il existe une augmentation des pression extrémales dans la zone oscillante, pour les trois rapports de longueur L/D . Den Doelder et Koopmans [65] observent également une augmentation de l'amplitude des oscillations de pressions mais la valeur de ces amplitudes est beaucoup plus faible (jusqu'à 0.4 MPa) que celle observée avec le PS 2.

De plus, comme en témoigne la figure 5. 49. b, la période du signal de pression semble diminuer avec le taux de cisaillement apparent. Ce point sera développé au paragraphe suivant.

Enfin, nous observons, comme avec l'utilisation d'un convergent conique, une diminution du taux de cisaillement apparent critique lorsque le rapport L/D croît. Nous pourrions remarquer au paragraphe V. 4. 4 que cette tendance est confirmée aux températures de 190 et 200°C.

V. 4. 3. Etude du signal de pression dans la zone oscillante

Le signal de pression mesuré se décompose en deux phases cycliques. On distingue une phase « de montée » où le signal évolue vers une pression maximum et une phase « de descente » où le signal « décroche » pour atteindre une valeur de pression plancher. La forme adoptée par le signal de pression est tributaire du débit d'écoulement imposé.

Nous avons mesuré les temps de montée en pression t_1 et ceux de descente t_2 qui composent le parcours total du cycle de période T (avec $T = t_1 + t_2$). Les mesures de t_1 et t_2 ont été effectuées par lecture directe du signal de pression $P(t)$, puis moyennées. Les périodes T du cycle ont été calculées par transformée de Fourier sur un échantillon représentatif du signal de pression.

La figure 5. 50 montre l'évolution de la période T , pour les trois rapports de longueurs L/D étudiés.

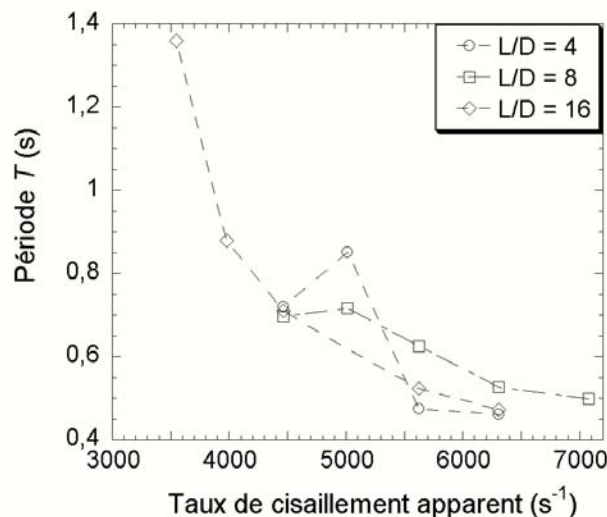


Fig. 5. 50 : Evolution de la période T des oscillations de pression avec le taux de cisaillement apparent, pour trois rapports de longueur, à 180 °C ($D = 0.93$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

La période T décroît de manière générale avec l'augmentation du débit réduit. Cette décroissance de la période s'observe également sur le défaut oscillant classique [7].

Sur la figure 5. 51, est représentée la variation des temps de montée t_1 et des temps de descente t_2 avec le débit réduit.

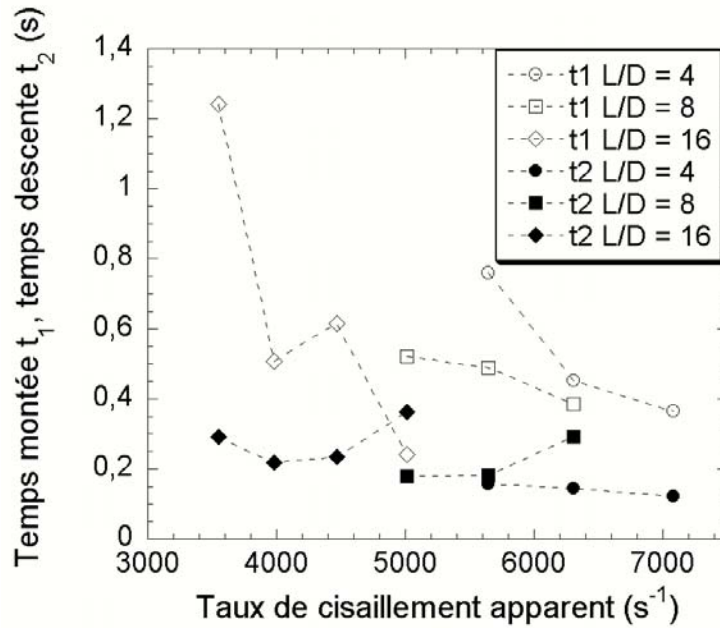


Fig. 5. 51 : Evolution des temps de montée t_1 et de descente t_2 avec le taux de cisaillement apparent, pour trois rapports de longueur, à 180 °C ($D = 0.93$ mm et $\alpha = 90^\circ$).

Le graphique de l'évolution comparée des temps t_1 et t_2 nous montre que le temps de descente t_2 varie très peu avec le débit alors que le temps de montée t_1 diminue fortement. Ceci confirme l'impression donnée par les signaux de pression ; le raccourcissement du temps de cycle correspond en fait à une diminution du temps nécessaire t_1 pour atteindre la pression critique. Nous visualisons ce phénomène sur la figure 5. 52. a par l'évolution normalisée d'une période T avec le débit réduit.

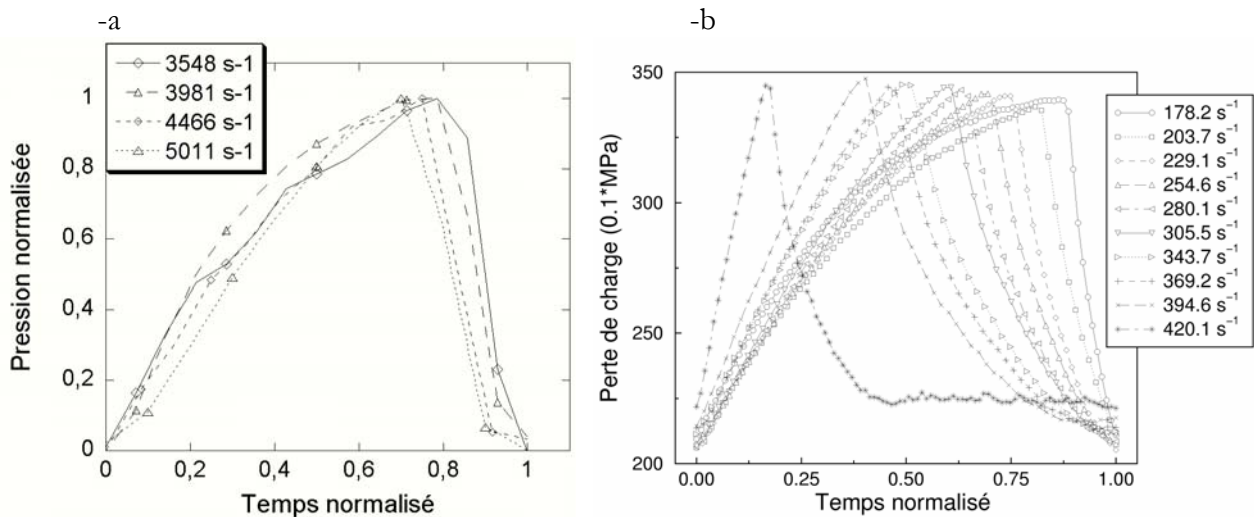


Fig. 5. 52 : Evolution du signal de pression normalisée pour différents taux de cisaillement apparents, pour le PS 2, à 180 °C ($D = 0.93$ mm, $L/D = 4$ et $\alpha = 90^\circ$) (a) et pour un PEHD présentant un défaut oscillant « classique » à 193 °C ($D = 0.93$ mm, $L/D = 32$ et $\alpha = 45^\circ$) [7] (b).

La figure 5. 52. b illustre les résultats d'une étude menée par Robert [7] sur un PEHD présentant un défaut oscillant « classique » : pour des débits assez faibles ($\dot{\gamma}_{app} = 178.2$ s⁻¹), le temps normalisé t_1/T est nettement supérieur au temps t_2/T . Le phénomène tend à s'atténuer puis à

s'inverser si le débit possède des valeurs plus élevées ($\dot{\gamma}_{app} = 420 \text{ s}^{-1}$). On observe globalement, mais de manière plus restreinte, la même atténuation avec le PS 2 étudié.

De plus, nous avons effectué, à partir d'extrudats refroidis à température ambiante en sortie de filière, des mesures de longueurs, dans la direction d'écoulement, relativement aux zones lisses et aux zones présentant le défaut volumique périodique. Ces mesures n'ont été faites que pour un débit d'écoulement ($\dot{\gamma}_{app} = 7079 \text{ s}^{-1}$) et ce, en raison de la difficulté de collecte des extrudats évoquée au chapitre III. Elles ont permis de déterminer les temps d'extrusion relatifs aux zones « lisses » et « perturbées », respectivement. La vitesse moyenne du fluide en sortie de filière s'exprime en effet par la relation suivante :

$$V_{moy} = \frac{Q}{S} = \frac{D\dot{\gamma}_{app}}{8} \quad \text{Eq. 5. 22.}$$

avec Q le débit volumique, S la section du capillaire et D son diamètre.

Afin de s'affranchir des effets de gonflement en sortie de filière, nous avons utilisé la relation 5. 23 [8] :

$$V = V_{moy} \left(\frac{D}{D_{refroidi}} \right)^2 \frac{\rho_{180}}{\rho_{20}} \quad \text{Eq. 5. 23.}$$

où $D_{refroidi}$ est le diamètre de l'extrudat refroidi à température ambiante et ρ la densité prise respectivement à 180 et 20 °C.

Ainsi, pour une condition d'écoulement donnée ($L/D = 4$; $\dot{\gamma}_{app} = 7079 \text{ s}^{-1}$), on a mesuré les dimensions de l'extrudat, pour huit périodicités du défaut.

Les temps d'extrusion moyennés associés aux zones lisses et perturbées de l'extrudat s'élèvent respectivement à 0.28 s et à 0.14 s. Ces valeurs sont proches des temps de montée t_1 de 0.36 s et de descente t_2 de 0.12 s, obtenus à partir du signal de pression.

Ces résultats tendent à nous convaincre que les zones lisses de l'extrudat correspondent à la phase de montée en pression et que la fraction de l'extrudat perturbé est associée à la phase de descente du signal de pression. La figure 5. 53 résume cette conclusion, sachant que l'extrudat et le signal de pression présentés n'ont pas été collectés sur une base de temps synchronisée.

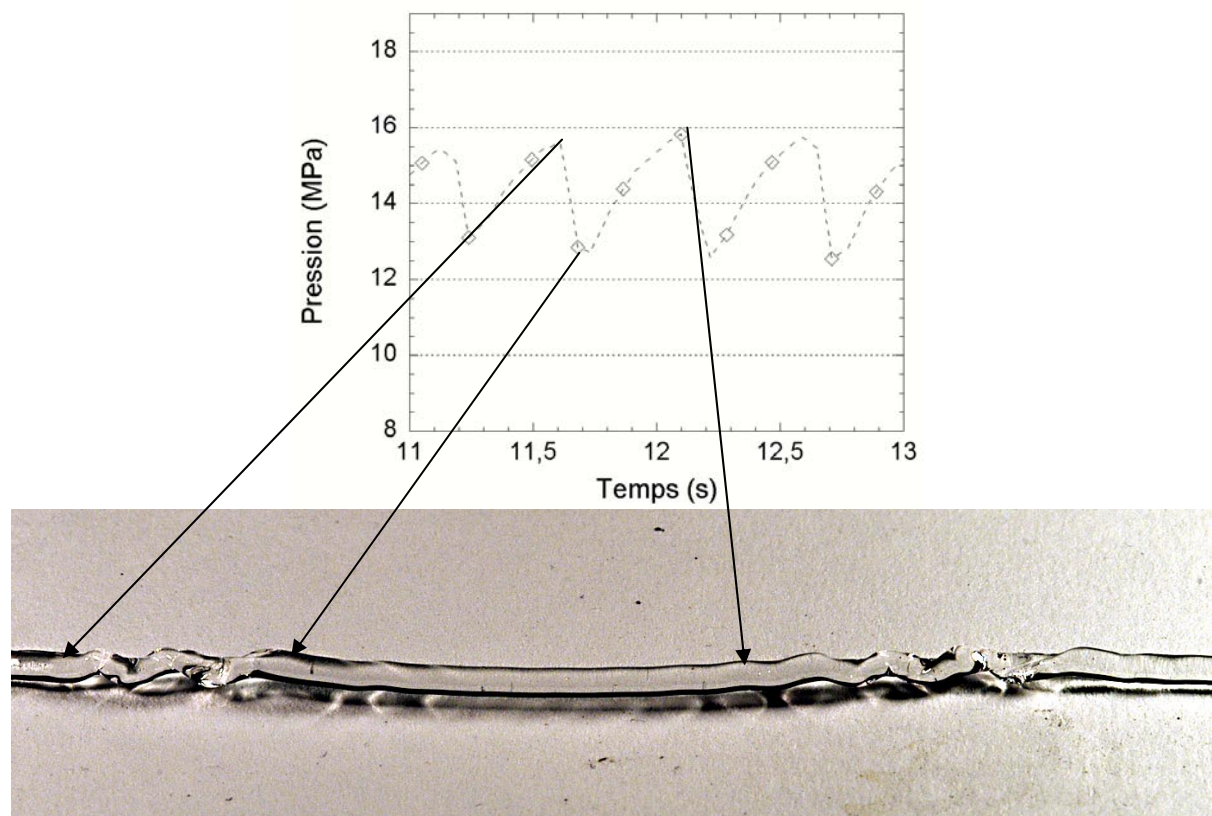


Fig. 5. 53 : Variation du signal de pression et extrudat associé, à 180 °C ($D = 0.93$ mm, $L/D = 4$, $\alpha = 90^\circ$ et $\dot{\gamma}_{app} = 7079$ s⁻¹).

V. 4. 4. Influence de la température

Nous avons réalisé des essais à des températures d'écoulement de 180, 190 et 200 °C pour trois géométries d'écoulement ($L/D = 4, 8$ et 16). La filière utilisée possède une entrée à contraction brusque, pour laquelle le PS 2 présente le défaut volumique oscillant.

Les courbes d'écoulement apparentes associées au rapport L/D de 16 ont été représentées sur la figure 5. 54.

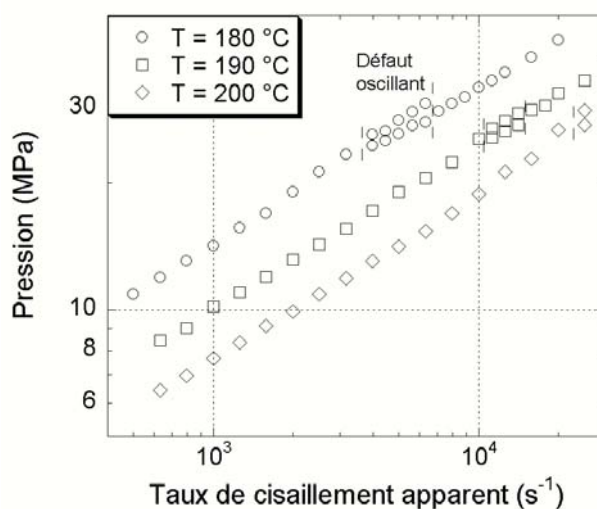


Fig. 5. 54 : Courbes d'écoulement apparentes obtenues pour des températures de 180, 190 et 200 °C ($D = 0.93$ mm, $L/D = 16$ et $\alpha = 90^\circ$).

Le graphique montre que l'élévation de la température repousse l'apparition de l'instabilité volumique périodique vers des taux de cisaillement apparents plus importants. Les débits réduits critiques associés aux températures de 180, 190 et 200 °C s'élèvent à 3981, 11220 s⁻¹ et 25119 s⁻¹.

Les résultats précédents sont confirmés par les essais effectués avec des filières possédant des rapports de longueur de 4 et 8. Il figurent en annexe XI. Notons qu'avec des filières aussi courtes, les conditions d'extrusion autorisées par le rhéomètre ne nous ont pas permis d'atteindre le défaut, pour une température de 200 °C. En effet, le taux de cisaillement apparent critique augmente quand la longueur d'écoulement utilisée diminue.

Par ailleurs, on constate que la pression critique d'apparition du défaut augmente significativement avec la température. En effet, d'après la figure 5. 54, les pressions critiques estimées au déclenchement du défaut prennent respectivement les valeurs moyennes de 25.3, 26.3 et 28.6 MPa pour les températures de 180, 190 et 200 °C.

L'application du principe de superposition en temps/température aux courbes d'écoulement apparentes est présentée sur la figure 5. 55.

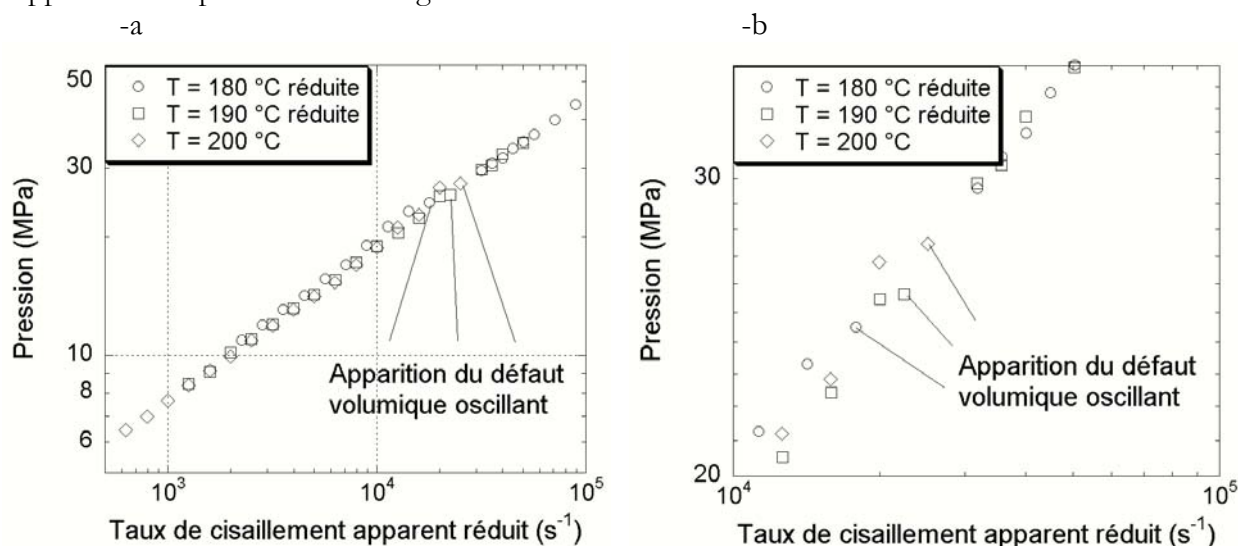


Fig. 5. 55 : Courbes d'écoulement apparentes obtenues après application du principe de superposition temps/température, pour une température de référence de 200 °C ($D = 0.93$ mm, $L/D = 16$ et $\alpha = 90^\circ$). La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

Par souci de clarté, nous n'avons représenté que les branches I et II des courbes d'écoulement. Seul le premier point de la zone oscillante a été tracé de façon à préciser l'apparition du défaut (point associé au minima de pression).

Les facteurs de glissement a_T issus de cette superposition en temps/température sont les mêmes que ceux utilisés en Annexe VI. 2, pour le PS 2. Pour une température de référence de 200 °C, ils possèdent les valeurs de 4.5 et 2 qui supposent des températures d'écoulement de 185 et 193 °C, respectivement, au lieu de 180 et 190 °C. Rappelons en effet que ces essais ont été réalisés à des taux de cisaillement apparents très élevés, rendant le phénomène d'auto-échauffement largement présent au cours des mesures de pression. L'incertitude sur la température d'écoulement a été estimée à 10 °C, au regard des coefficients de glissement estimés sur toutes nos courbes d'écoulement.

La figure 5. 55 montre que les courbes se superposent bien, aussi bien en branche I qu'en branche II. Il s'agit d'un résultat observé avec le défaut oscillant « classique » [7]. Par contre, les

zones oscillantes ne sont pas superposables puisque, en l'occurrence, les niveaux de pression critiques ne sont pas les mêmes.

Les débits réduits critiques prennent les valeurs de 17915, 22440 et 25119 s^{-1} , à des températures de 180, 190 et 200 °C. La précision des mesures effectuées ne nous permet pas réellement de savoir si d'une expérience à l'autre le déclenchement du défaut s'opère pour les mêmes débits réduits critiques. Le cas des rapports L/D de 4 et 8 apporte des conclusions opposées. Alors que les taux de cisaillement apparents réduits critiques sont sensiblement les mêmes avec un rapport L/D de 8, le cas du rapport L/D 4 présente des débits critiques radicalement différents. Le fait que le contrôle de la température soit très délicat rend les conclusions de ces résultats difficiles à mettre en évidence.

Pour conclure sur ces résultats, il semble que le « défaut volumique oscillant » dispose de caractéristiques communes au défaut oscillant « classique » généralement décrit dans la littérature. Ainsi, la période T ainsi que la forme du signal (composantes t_1 et t_2) évoluent globalement de la même façon. La phase d'extrudat perturbée correspond aussi à la phase de descente du signal de pression instationnaire. Par contre, le signal de pression n'évolue pas entre deux valeurs constantes, comme c'est le cas pour le défaut oscillant classique [5, 7]. De plus, contrairement au défaut oscillant « classique » et au défaut hélicoïdal, la valeur de pression critique d'apparition du défaut augmente nettement avec la température. Ce défaut n'est donc pas totalement prévisible par le principe d'équivalence temps/température. Enfin, si l'on observe la totalité des courbes d'écoulement apparentes présentées, on note que les pentes respectives des branches I et II ne sont pas véritablement les mêmes. On observe une légère baisse de la pente associée à la branche II, par rapport à la branche I. Cette observation pourrait témoigner de la présence d'un mécanisme de glissement à la paroi, qui semble toutefois nettement moins prononcé que dans le cas d'un défaut oscillant « classique ».

V. 4. 5. Comparaison des études menées avec les filières de demi-angle de 45 et 90°

La superposition des courbes d'écoulement obtenues pour les deux géométries de convergent d'entrée montre une particularité surprenante du défaut oscillant volumique, comme le montre la figure 5. 56.

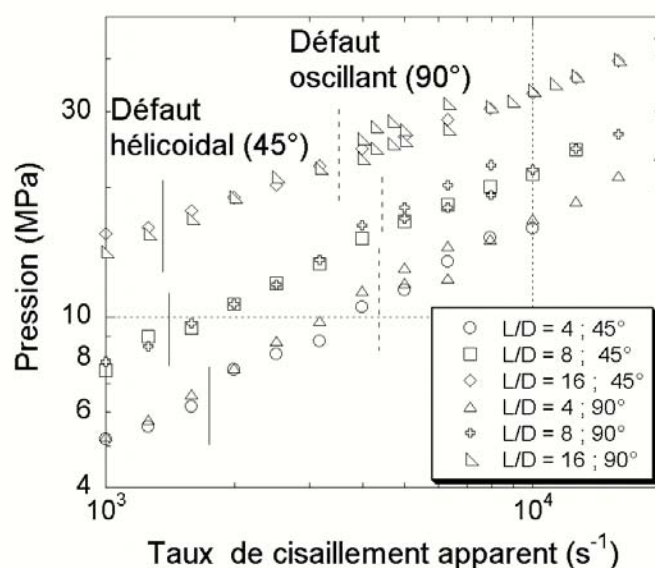


Fig. 5. 56 : Superposition des courbes d'écoulement apparentes pour les deux géométries de convergent, à 180°C ($D = 0.93$ mm).

Les deux courbes d'écoulement apparentes se superposent assez bien, ce qui montre qu'il existe peu d'effets d'entrée sur les mesures de pression.

Il est généralement admis que les faibles angles d'entrée repoussent les instabilités volumiques [20, 42]. C'est une constatation qui a par ailleurs été mise en évidence au cours du chapitre III sur le PS 1 et le PP. Avec le PS 2, aucun défaut hélicoïdal n'est observé si l'on passe de la configuration de type « conique » à la configuration de type « contraction brusque ». En effet, le fait d'adopter une géométrie sévère de type « fond plat » devrait provoquer une déstabilisation de l'écoulement amont anticipée par rapport au cas d'un demi-angle de convergent 45° . Ce phénomène n'est en aucun cas observé. Par contre, on assiste au développement inattendu d'un défaut de type « oscillant » qui apparaît pour des débits très supérieurs à ceux de déclenchement du défaut hélicoïdal.

Ce comportement très singulier demeure à l'heure actuelle très délicat à interpréter, car nous disposons de peu d'informations sur l'écoulement en amont du capillaire. Les expériences que l'on aurait pu mener en filière plate transparente auraient supposé des débits réduits très importants (supérieurs à 3000 s^{-1}) que le dispositif d'extrusion n'était pas capable d'atteindre.

Néanmoins, il apparaît que le comportement de ce polystyrène reste très surprenant : l'écoulement est stable avec le convergent à fond plat pour des états de contraintes pour lesquels l'écoulement est déstabilisé avec une forme de convergent moins sévère ($\alpha = 45^\circ$).

CONCLUSION GENERALE

CONCLUSION GENERALE

Nous avons étudié les instabilités volumiques associées à deux polystyrènes de masses moléculaires différentes ainsi qu'à un polypropylène. Nous avons particulièrement axé notre recherche sur la description de l'instabilité hélicoïdale (ou instabilité volumique périodique en écoulement parallélipédique) plutôt que sur le défaut chaotique. L'initiation de l'instabilité hélicoïdale consiste en une déstabilisation de l'écoulement amont, qui se déplace périodiquement de part et d'autre de l'axe de symétrie du réservoir. Cette perte de symétrie dans l'écoulement se propage à travers le canal d'écoulement pour présenter, en sortie de filière, des distorsions hélicoïdales dans le volume de l'extrudat. Le développement de ce défaut quand le débit augmente se caractérise par une amplification de la perte de symétrie de l'écoulement amont, dont la conséquence se traduit en sortie de filière par des volumes hélicoïdaux de plus en plus prononcés. Le mécanisme lié au déclenchement de cette instabilité demeure à l'heure actuelle toujours mal compris, même si on l'attribue aux importantes sollicitations élongationnelles que subit le fluide lorsqu'il est forcé dans la contraction.

Au chapitre I, nous avons appris de l'étude bibliographique que la géométrie du convergent d'entrée, la longueur d'écoulement, la température ou encore la masse moléculaire constituaient des paramètres influant quant à l'apparition du défaut de volume.

Le rôle des recirculations que présentent généralement les polymères branchés à l'entrée d'une contraction apparaît de plus en plus nuancé vis à vis de la déstabilisation de l'écoulement principal. Ainsi, l'instabilité des vortex n'est plus véritablement décrite comme à l'origine des défauts de volume. Les auteurs s'attachent plus particulièrement à caractériser l'écoulement principal, en particulier en terme de contraintes ou de vitesses de déformation élongationnelles. Néanmoins, les mécanismes macromoléculaires sous-jacents à la perte de symétrie de l'écoulement amont restent mal compris.

C'est au travers du chapitre II que nous avons décrit les caractérisations moléculaires et rhéologiques des trois polymères étudiés. Cette étude préliminaire a été menée de façon à décrire le comportement des matériaux aussi bien en cisaillement simple qu'en élongation uniaxiale, pour le PP et le PS 1. Nous avons remarqué que ces deux produits se comportaient de manière assez semblable, le PP étant néanmoins légèrement plus élastique que le PS 1. De plus, le PS 1 est très visqueux et élastique par rapport au PS 2 dont la masse moléculaire est sensiblement plus faible.

Le chapitre III rassemble les résultats obtenus en rhéométrie capillaire pour les trois polymères étudiés. A son apparition, le défaut hélicoïdal possède une certaine fréquence qui n'évolue pas avec le débit réduit, contrairement aux volumes hélicoïdaux qui augmentent de façon linéaire. De plus, la longueur de la filière a une influence, non pas sur l'amortissement de l'instabilité le long du capillaire, mais sur l'ampleur et la fréquence de l'instabilité à son apparition même, soit à l'entrée du capillaire.

L'influence du diamètre de filière utilisé a été interprétée comme l'influence du rapport de contraction qui existe entre le réservoir et le canal. Cette étude a montré que l'utilisation d'un rapport de contraction élevé tend à déclencher le défaut hélicoïdal pour de faibles débits d'écoulement. Néanmoins, nous avons noté que l'initiation du défaut avait lieu pour approximativement le même niveau de pression mesurée en amont du convergent.

Pour différentes températures, le défaut apparaît également pour les mêmes niveaux de pression, mais est repoussé à des débits réduits plus importants si l'on utilise des températures plus élevées. On note une bonne superposition, selon le principe d'équivalence temps/température, des ruptures de pente des courbes d'écoulement apparentes, propres à l'apparition du défaut. On a pu de plus remarquer que les fréquences de l'instabilité, très différentes d'une température à l'autre, peuvent se superposer, toujours selon l'application du principe de superposition temps/température. Ceci montre que l'instabilité est très fortement liée aux paramètres viscoélastiques du polymère, qui régissent à la fois son déclenchement et son expression propre (notamment en terme de fréquence).

Nous avons également remarqué que l'utilisation de demi-angle de convergent de 45° permet de repousser l'instabilité hélicoïdale à des débits supérieurs par rapport à une contraction brusque, notamment dans le cas du PP. Par ailleurs, les fréquences associées aux faibles angles de convergent sont plus élevées.

A partir de ces résultats, il apparaît que le défaut, initié à l'entrée du capillaire, dépend fortement du caractère élongationnel de l'écoulement dans le convergent. La contrainte et le taux de déformation élongationnels ainsi que le nombre de Weissenberg apparaissent comme d'intéressants critères, susceptibles de traduire pertinemment le déclenchement de l'instabilité. Néanmoins, il ne peuvent traduire et expliquer les différences de comportement observées d'une forme de convergent à l'autre.

Enfin, nous avons mis en évidence, par la comparaison du PS 1 et du PS 2, le fait que l'initiation de l'instabilité a lieu pour des débits d'écoulement d'autant plus faibles que la masse moléculaire (ou la viscosité) est élevée et que le fluide est élastique. Le comportement du PS 1 et du PP semble présenter de nombreuses similitudes dans l'initiation et le développement du défaut hélicoïdal. Malgré cela, dans les mêmes conditions d'écoulement, alors que les deux matériaux sont rhéologiquement très proches aussi bien en cisaillement simple qu'en élongation uniaxiale, le déclenchement de l'instabilité reste différent et par conséquent largement tributaire de la structure moléculaire du matériau.

Par la suite, ces observations expérimentales ont pu être validées et exploitées avec le PS 1 et le PP, grâce à l'utilisation d'une filière plate transparente alimentée par une extrudeuse. Le dispositif expérimental permet en effet de visualiser l'écoulement en amont de la filière, soit au siège même de l'initiation de l'instabilité. Le défaut hélicoïdal est alors dénommé « défaut volumique périodique ».

A l'apparition de ce dernier, on observe une déstabilisation de l'écoulement principal : elle se caractérise, en biréfringence d'écoulement, par des oscillations périodiques d'isochromes situées dans le réservoir amont et se propageant dans une direction perpendiculaire à l'écoulement. Avec le débit d'écoulement, les déplacements de franges s'amplifient avec une conservation de la fréquence d'oscillation. Pour des débits encore plus élevés, on se situe dans la transition entre un défaut volumique périodique et un défaut chaotique où l'amplitude et la fréquence de la déstabilisation ne sont plus constants au cours du temps.

Des mesures en vélocimétrie laser-Doppler ont montré que le développement du défaut volumique périodique s'accompagne d'oscillations périodiques de vitesses dans la direction perpendiculaire à l'écoulement, en phase avec les déplacements d'isochromes observés.

Pour une contraction brusque, quel que soit le débit d'écoulement considéré, ces mesures révèlent également la présence de vortex, formant un angle de 100° avec l'écoulement principal. On assiste à une déstabilisation de ces vortex pour des taux de cisaillement supérieurs aux débits réduits critiques relevés à l'apparition du défaut. Des mesures de pics de vitesses élevés (5 mm s^{-1}) dans les recirculations attestent du déchargement aléatoire des vortex en direction de l'écoulement principal. Un tel phénomène n'a pas été observé à l'apparition du défaut volumique périodique et ne peut pas, à notre sens, expliquer son origine.

Les paramètres d'écoulement qui nous ont semblé, au vu des résultats de la rhéométrie capillaire, les plus déterminants quant à l'initiation du défaut ont également été étudiés en filière plate.

L'étude associée à l'influence de la température d'écoulement a confirmé les conclusions émises en écoulement axisymétrique, de même que celle relative à l'influence du rapport de contraction. Nous nous sommes particulièrement attachés à comprendre l'influence de la géométrie du convergent d'entrée sur le déclenchement et le développement du défaut. On observe que la géométrie d'entrée limite, dans le cas d'angles plus fermés, les déplacements de franges : à même débit d'écoulement, la déstabilisation de l'écoulement est moindre mais est affectée d'une fréquence plus élevée. Par ailleurs, comme nous l'avions observé en sortie d'écoulement à l'aide du rhéomètre capillaire, l'instabilité se déclenche d'autant plus tardivement que l'angle de convergent est faible. De plus, alors que le déclenchement du défaut s'opère pour des taux de cisaillement de 70 et 130 s^{-1} pour les convergents de demi-angle 45° et 30° respectivement, l'utilisation d'un convergent doux permet d'atteindre un taux de cisaillement apparent critique de 740 s^{-1} . Dans le cas du PP et contrairement au cas d'une contraction brusque, aucune déstabilisation n'est observée avec l'utilisation de convergent de demi-angle 45° .

Le chapitre V fait l'objet, à l'issue de l'approche descriptive de l'instabilité volumique périodique, d'une caractérisation de l'écoulement amont, dans les conditions de déclenchement du défaut.

En vélocimétrie laser-Doppler, on observe, d'un rapport de contraction à l'autre, que la vitesse de déformation mesurée sur l'axe de symétrie, est un critère pertinent, capable de décrire l'apparition de l'instabilité. Par ailleurs, en biréfringence d'écoulement, l'étude du comportement du PP montre que, pour plusieurs rapports de contraction et pour une forme de convergent donné, il suffit, pour initier l'instabilité, que le fluide présente une valeur critique de la DCN sur l'axe de symétrie. Dans ce cas, une orientation moléculaire critique semble pouvoir décrire la naissance de l'instabilité et témoigner ainsi d'un état de déformation ultime des chaînes, atteint à la contraction.

Les mesures menées en vélocimétrie laser-Doppler nous ont également montré que, d'une forme de convergent à l'autre, la vitesse de déformation critique atteinte à la contraction s'avère différente et ainsi insuffisante pour unifier et « légitimer » les différentes conditions d'écoulement critiques relevées. De même, la valeur de la DCN maximale critique est tributaire de la forme du convergent. En effet, l'étude en biréfringence d'écoulement montre, dans le cas du PP, qu'avec l'utilisation d'un demi-angle de convergent de 45° , la DCN critique atteinte à la contraction peut être largement supérieure à celle nécessaire à la naissance du défaut dans le cas d'une contraction brusque, sans qu'aucune déstabilisation de l'écoulement amont n'apparaisse.

L'approche numérique par éléments finis a confirmé ces derniers résultats expérimentaux, obtenus pour diverses géométries de convergent. On remarque que, dans les conditions critiques de déclenchement, des niveaux de DCP plus importants, à la fois sur l'axe de symétrie mais aussi

le long des lignes de courant décrivant la géométrie du convergent, sont « nécessaires » au déclenchement du défaut, pour les formes de convergent peu sévères.

Ces résultats montrent que la déstabilisation de l'écoulement principal est fortement liée à la fois à la déformation ainsi qu'à l'histoire de la déformation que subit le fluide dans la région d'entrée de la filière. Le cas du convergent doux qui soumet l'écoulement à des déformations élongationnelles de façon plus anticipée et progressive que les convergents classiques laisse supposer que l'histoire de la déformation constitue un élément essentiel à la naissance du défaut.

A l'échelle de la macromolécule, ces déformations couplées aux vitesses de déformation plus ou moins sévères supposées par les diverses formes de convergent peuvent être associées à un phénomène de désenchevêtrement ou de rupture des macromolécules.

L'interprétation avancée au cours de ces travaux pour interpréter le mécanisme d'initiation du défaut est basée essentiellement sur les hypothèses de la mécanique des milieux continus. Cette approche reste macroscopique et ne nous permet pas de conclure véritablement sur les configurations éventuelles que pourraient adopter les macromolécules lors de la naissance du défaut. La simulation numérique par éléments finis, en intégrant des modèles physiques microscopiques, pourrait à l'avenir aider à mieux expliciter le phénomène de déstabilisation périodique de l'écoulement d'entrée.

ANNEXES

ANNEXES

Table des Matières

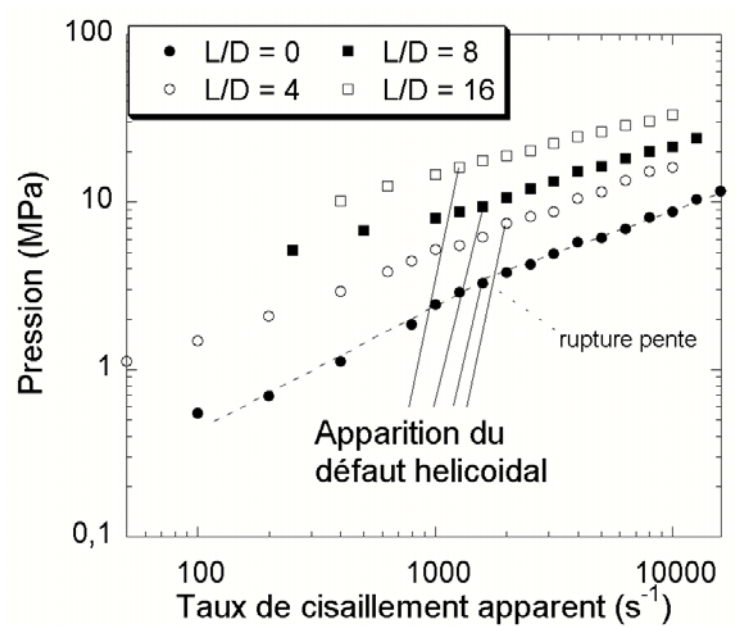
A. I. Géométries d'écoulement utilisées en filière plate.....	184
A. II. Courbes d'écoulement apparentes du PS 2 obtenues en rhéométrie capillaire, pour différents rapports de longueur L/D	185
A. III. Courbes d'écoulement apparentes obtenues en rhéométrie capillaire, pour différents diamètres D	186
A. III. 1. Courbes d'écoulement apparentes du PS 1 pour différents rapports de longueur L/D	186
A. III. 2. Courbes d'écoulement apparentes du PP.....	187
A. III. 3. Courbes d'écoulement apparentes du PS 2.....	188
A. IV. Courbes d'écoulement en contrainte réelle, obtenue en rhéométrie capillaire.....	189
A. IV. 1. Courbes d'écoulement du PP.....	189
A. IV. 2. Courbes d'écoulement du PS 2.....	189
A. V. Quantification du défaut hélicoïdal du PP : mesure de pas, diamètres et volumes hélicoïdaux.....	190
A. V. 1. Mesure de pas et diamètres hélicoïdaux, avec un même diamètre D	190
A. V. 2. Mesure de pas et diamètres hélicoïdaux, avec un même rapport L/D	190
A. V. 3. Mesure de volumes hélicoïdaux.....	191
A. VI. Influence de la température, en écoulement axisymétrique.....	192
A. VI. 1. Déclenchement du défaut hélicoïdal pour le PP.....	192
A. VI. 2. Déclenchement du défaut hélicoïdal pour le PS 2.....	192
A. VI. 3. Quantification du défaut hélicoïdal pour le PP.....	193
A. VII. Contrainte élongationnelle critique, calculée en rhéométrie capillaire, pour le PS 2.....	194
A. VIII. Nombre de Weissenberg critique calculé en rhéométrie capillaire.....	195
A. VIII. 1. Déclenchement du défaut hélicoïdal pour le PP.....	195
A. VIII. 2. Déclenchement du défaut hélicoïdal pour le PS 2.....	195
A. IX. Fréquence du défaut volumique périodique pour le PP, en filière plate.....	196
A. X. Identification des paramètres du modèle Rolie-Poly.....	197
A. X. 1. Equation sans étirement en régime permanent.....	197
A. X. 2. Equation avec étirement en régime permanent.....	198
A. XI. Influence de la température sur le déclenchement du défaut volumique oscillant, avec le PS 2.....	201
A. XI. 1. Courbes d'écoulement apparentes obtenues avec $L/D = 4$	201
A. XI. 2. Courbes d'écoulement apparentes obtenues avec $L/D = 8$	202

A. I. Géométries d'écoulement utilisées en filière plate

	Longueur L (mm)	Entrefer H (mm)	Demi-angle de convergent (°)
Géométrie 1	20.75	1.0	90
Géométrie 2	25.0	1.0	90
Géométrie 3	10.38	0.5	90
Géométrie 4	31.13	1.5	90
Géométrie 5	20.75	1.0	45
Géométrie 6	20.75	1.0	30
Géométrie 7	20.75	1.0	Convergent doux
Géométrie 8	10.38	0.5	45
Géométrie 9	10.38	0.5	30
Géométrie 10	10.38	0.5	Convergent doux
Géométrie Erlangen	30.0	0.78	90
Géométrie axi	35.0	$D = 2.0$	90

A. 1 : Paramètres géométriques des filières utilisées.

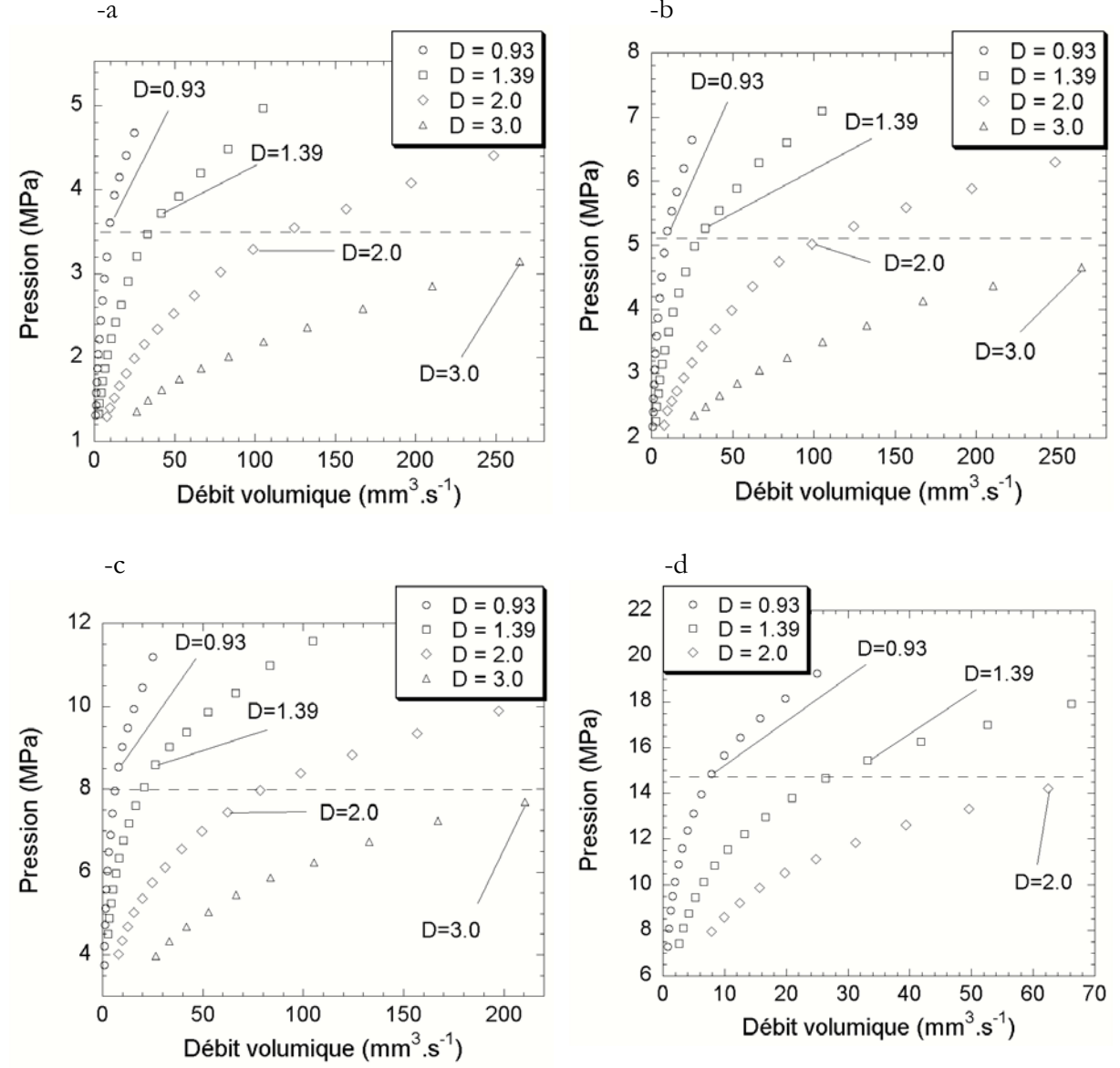
A. II. Courbes d'écoulement apparentes du PS 2 obtenues en rhéométrie capillaire, pour différents rapports de longueur L/D



A. 2. 1 : Courbes d'écoulement apparentes pour différents rapports L/D , à 180 °C ($D = 0.93$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

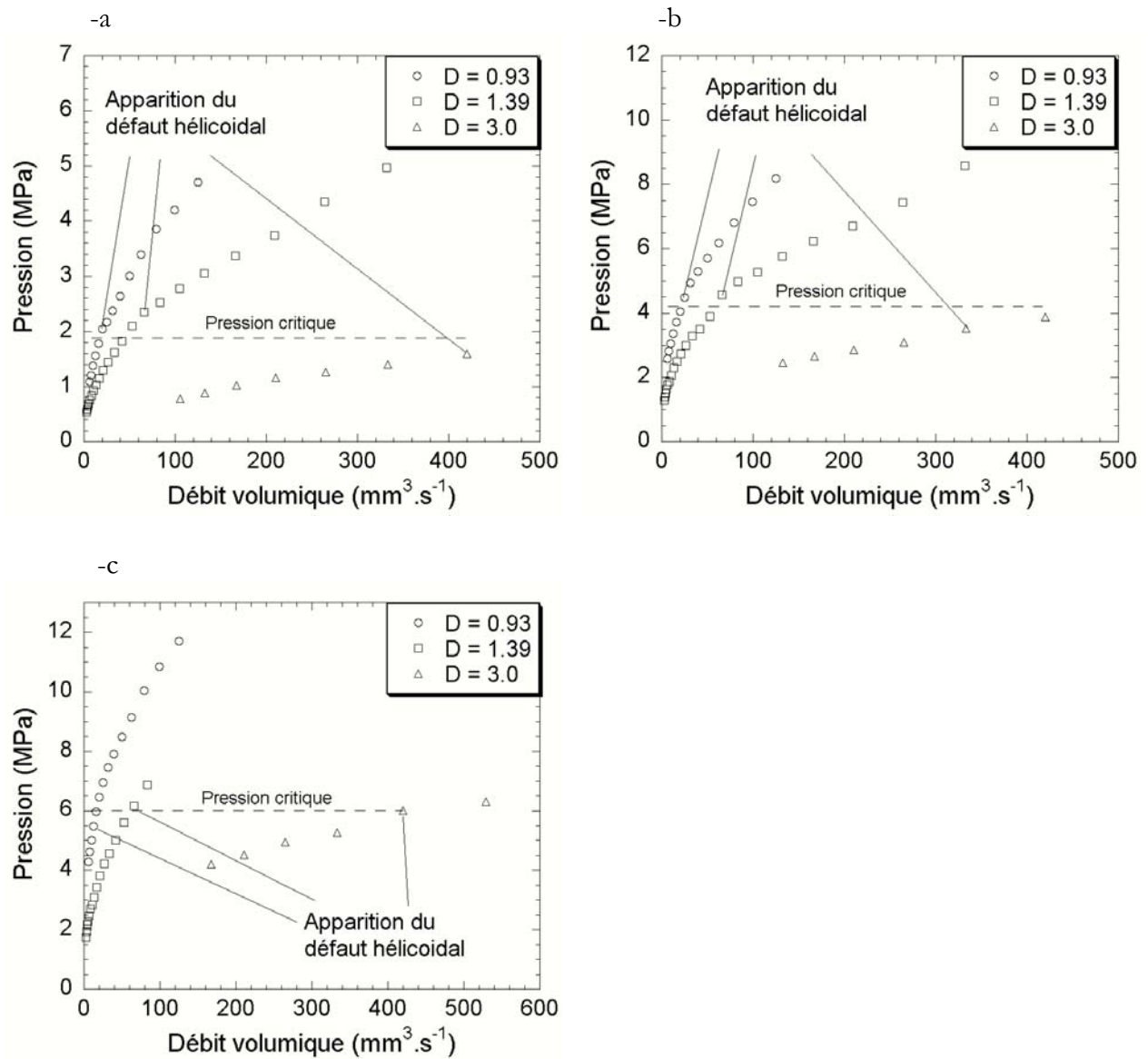
A. III. Courbes d'écoulement apparentes obtenues en rhéométrie capillaire, pour différents diamètres D

A. III. 1. Courbes d'écoulement apparentes du PS 1 pour différents rapports de longueur L/D



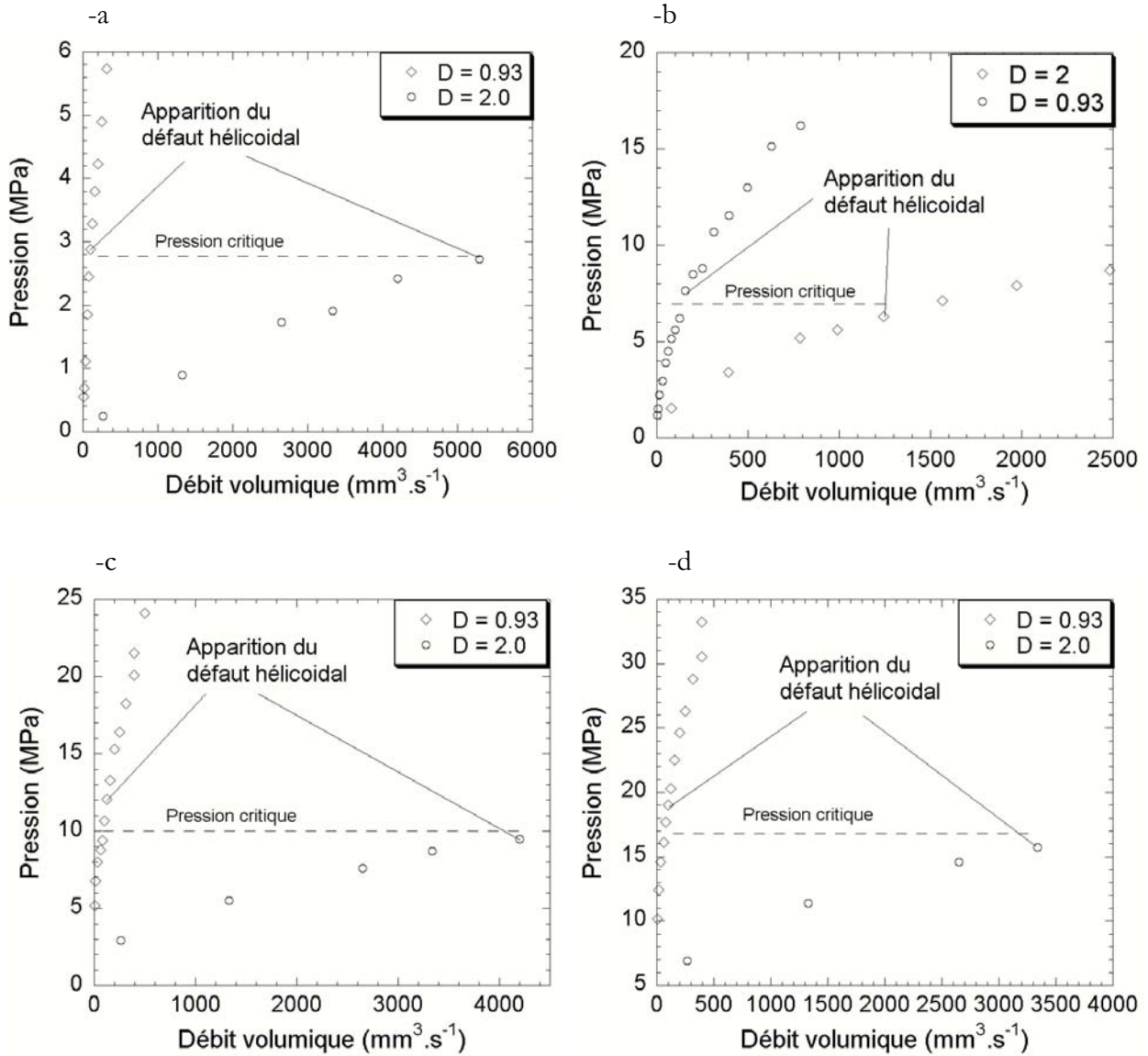
A. 3. 1 : Courbes d'écoulement apparentes, à 200 °C, pour des rapports L/D de 4 (a), 8 (b), 16 (c) et 32 (d), en fonction du débit volumique imposé ($\alpha = 45^\circ$).

A. III. 2. Courbes d'écoulement apparentes du PP



A. 3. 2 : Courbes d'écoulement apparentes, à 200 °C, pour des rapports L/D de 0 (a), 4 (b) et 8 (c), en fonction du débit volumique imposé ($\alpha = 45^\circ$).

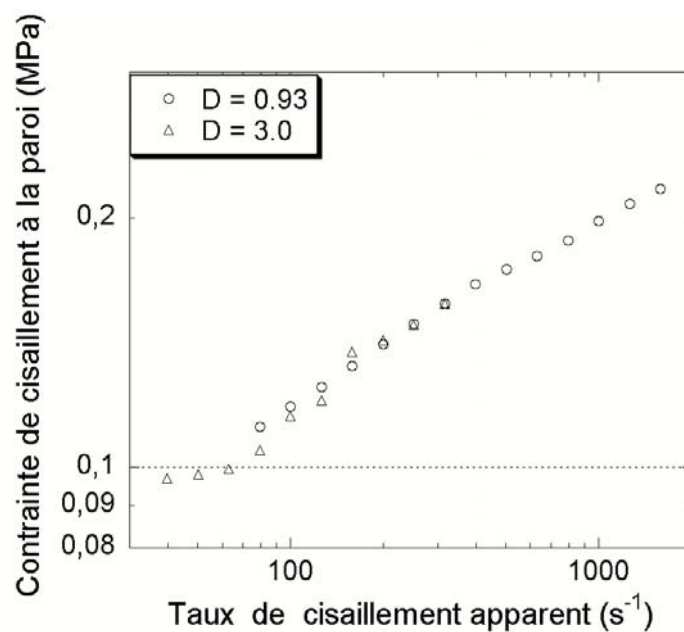
A. III. 3. Courbes d'écoulement apparentes du PS 2



A. 3. 3 : Courbes d'écoulement apparentes, à 180 °C, pour des rapports L/D de 0 (a), 4 (b), 8 (c) et 16 (d), en fonction du débit volumique imposé ($\alpha = 45^\circ$).

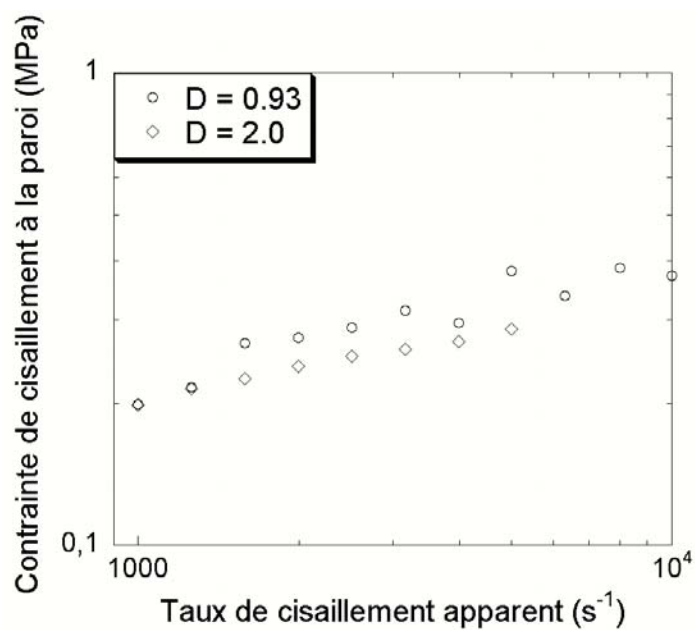
A. IV. Courbes d'écoulement en contrainte réelle, obtenue en rhéométrie capillaire

A. IV. 1. Courbes d'écoulement du PP



A. 4. 1 : Courbes d'écoulement en contrainte réelle à 200 °C ($\alpha = 45^\circ$).

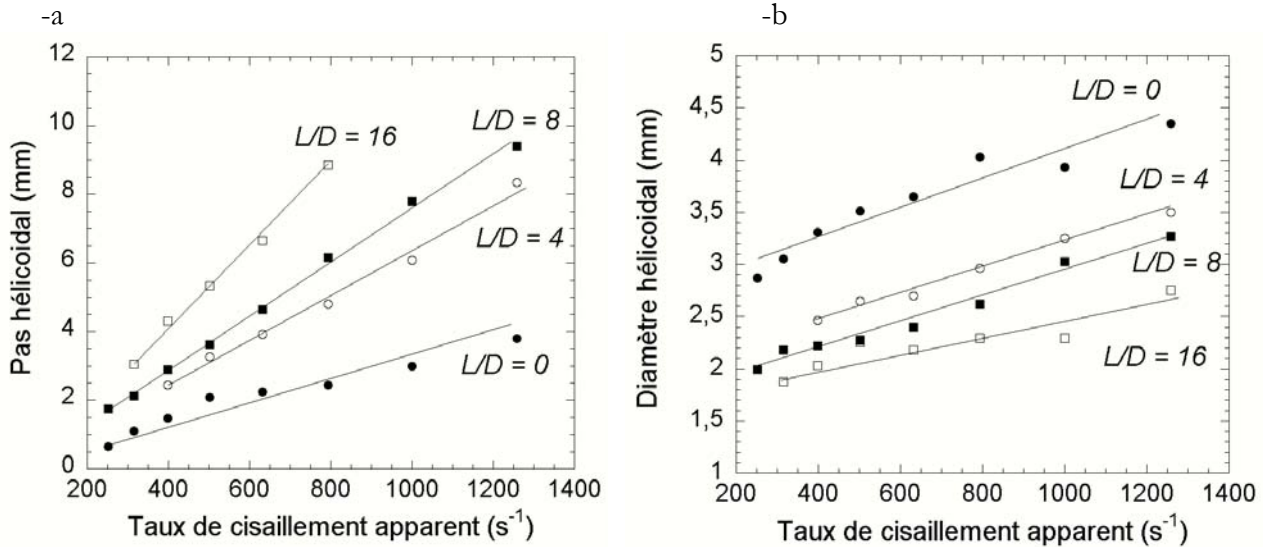
A. IV. 2. Courbes d'écoulement du PS 2



A. 4. 2 : Courbes d'écoulement en contrainte réelle à 180 °C ($\alpha = 45^\circ$).

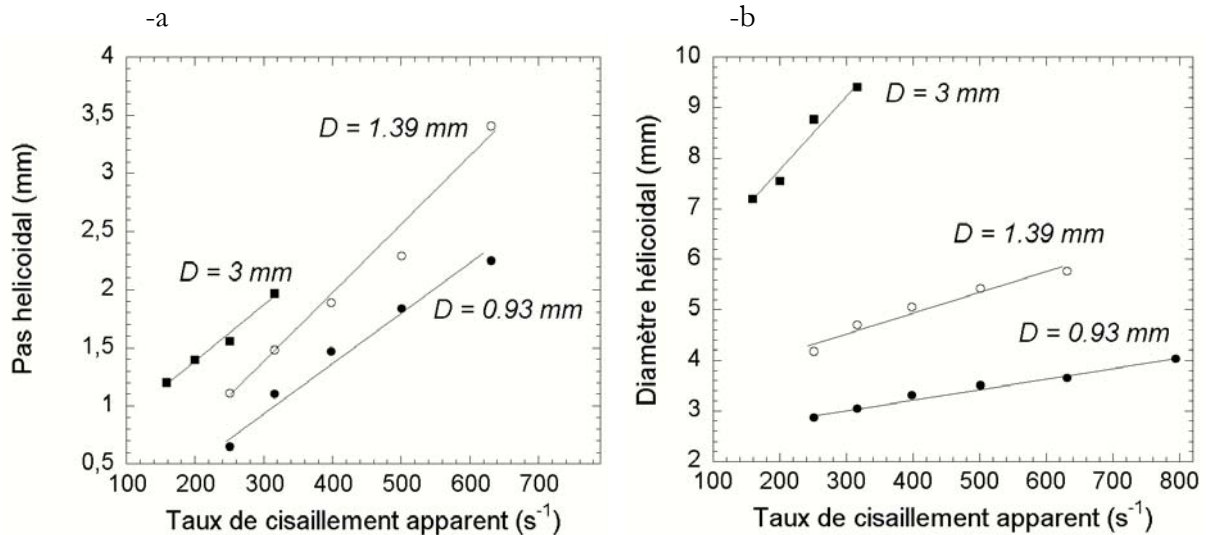
A. V. Quantification du défaut hélicoïdal du PP : mesure de pas, diamètres et volumes hélicoïdaux

A. V. 1. Mesure de pas et diamètres hélicoïdaux, avec un même diamètre D



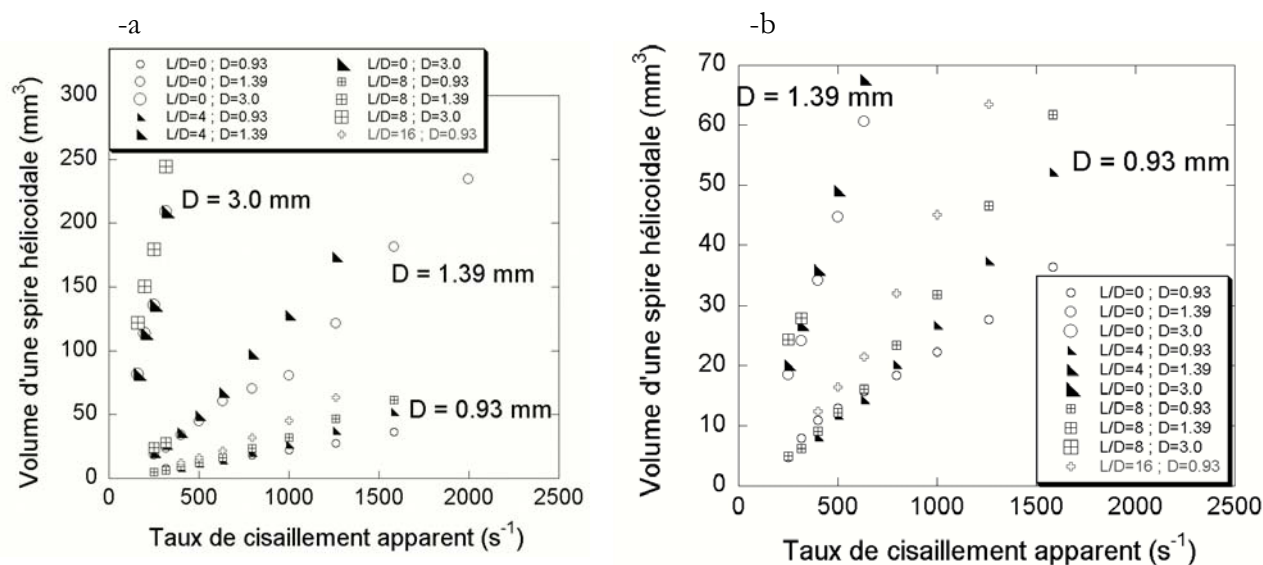
A. 5. 1 : Variation du pas (a) et du diamètre (b) de l'hélice, en fonction du taux de cisaillement apparent, à 200 °C, pour différents rapports L/D ($D = 0.93$ mm et $\alpha = 45^\circ$).

A. V. 2. Mesure de pas et diamètres hélicoïdaux, avec un même rapport L/D



A. 5. 2 : Variation du pas (a) et du diamètre (b) de l'hélice, en fonction du taux de cisaillement apparent, à 200 °C, pour différents diamètres D ($L/D \approx 0$ et $\alpha = 45^\circ$).

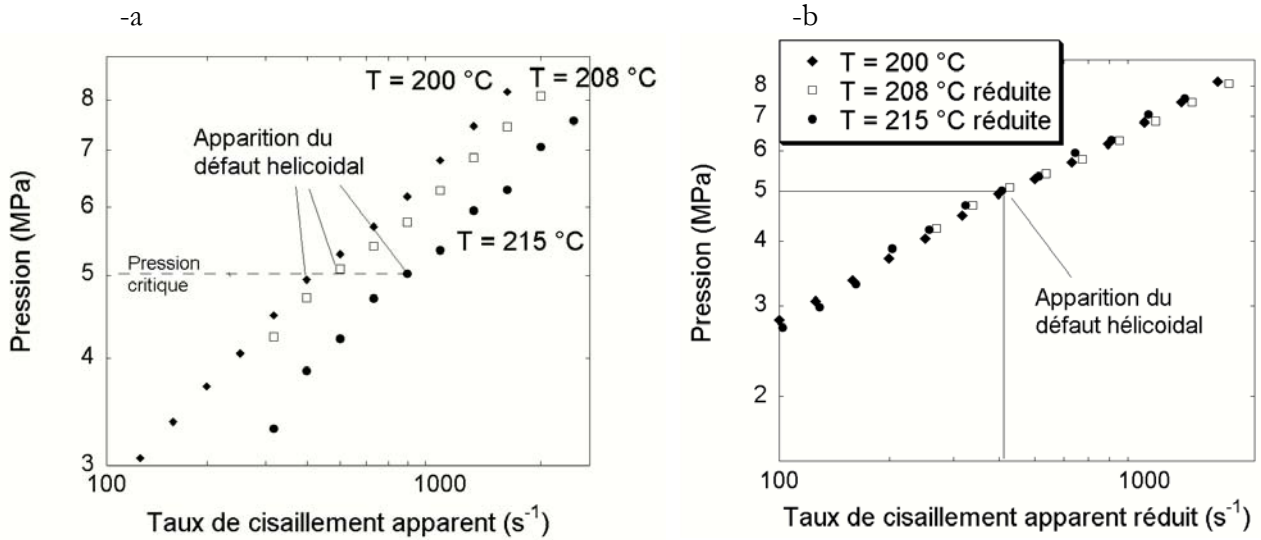
A. V. 3. Mesure de volumes hélicoïdaux



A. 5. 3 : Variation du volume hélicoïdal, en fonction du taux de cisaillement apparent, à 200°C , pour différents diamètres et longueurs de filières ($\alpha = 45^\circ$). La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

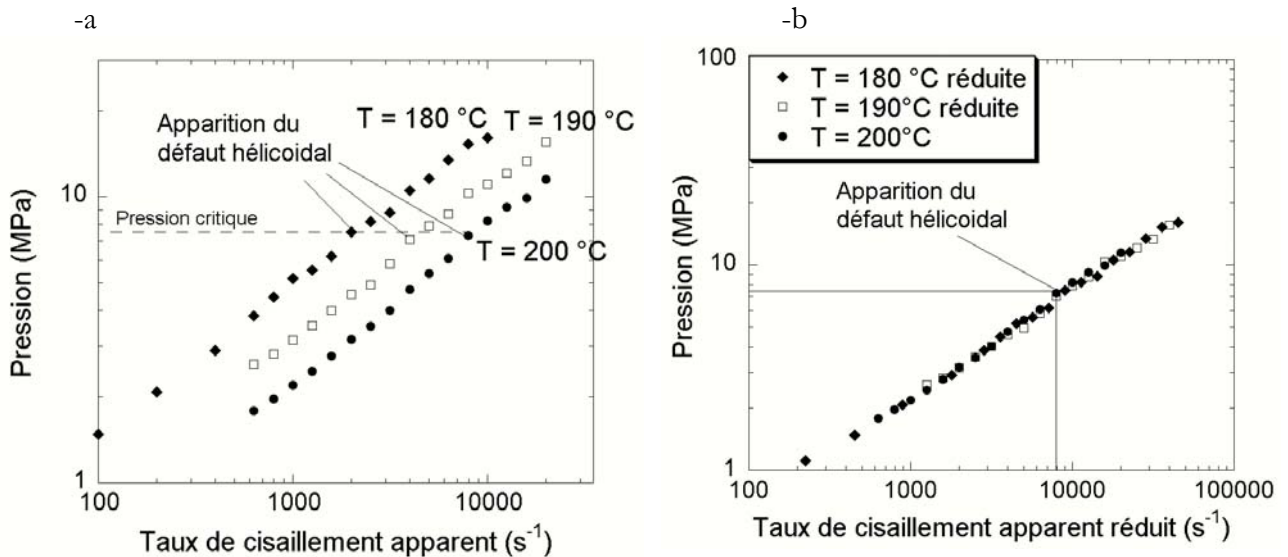
A. VI. Influence de la température, en écoulement axisymétrique

A. VI. 1. Déclenchement du défaut hélicoïdal pour le PP



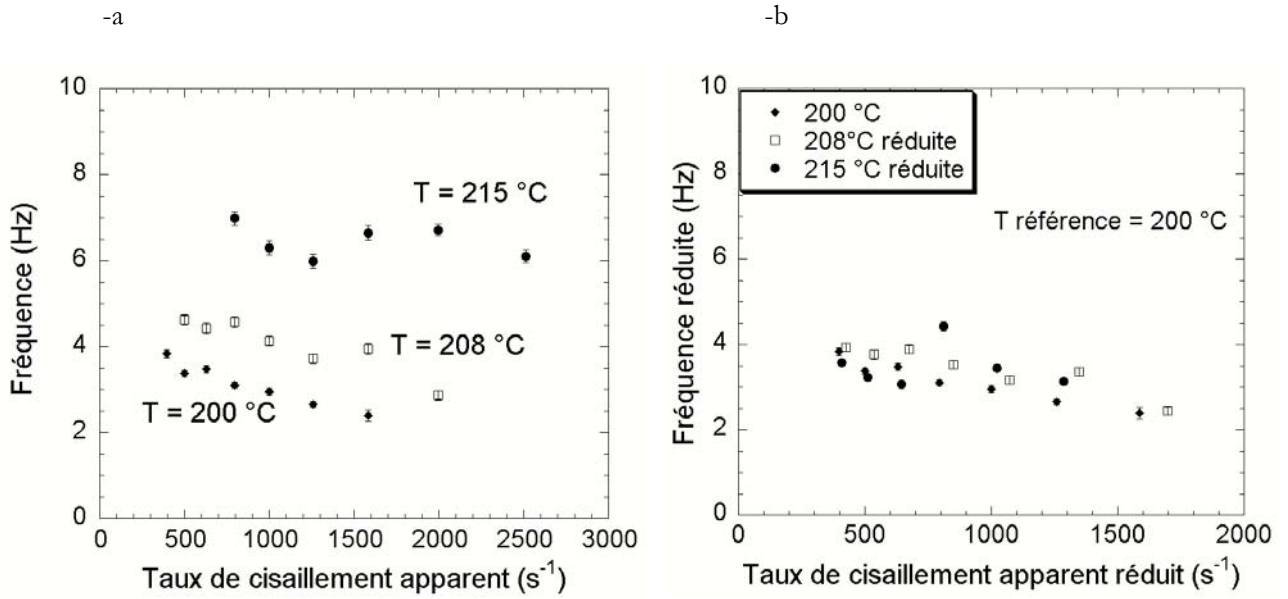
A. 6. 1 : Courbes d'écoulement apparentes à 200 °C, 208 °C et 215 °C (a), et après application du principe de superposition temps/température, pour une température de référence de 200 °C (b) ($D = 0.93\text{ mm}$, $L/D = 4$ et $\alpha = 45^\circ$).

A. VI. 2. Déclenchement du défaut hélicoïdal pour le PS 2



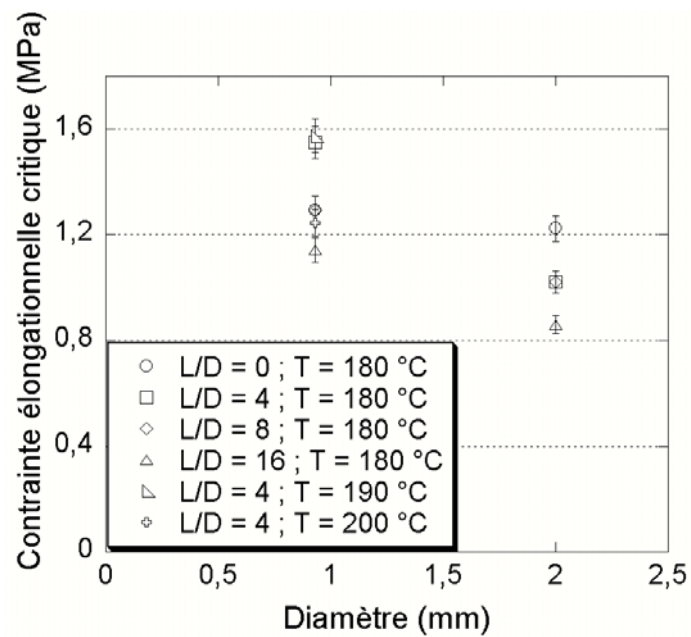
A. 6. 2 : Courbes d'écoulement apparentes à 180 °C, 190 °C et 200 °C (a), et après application du principe de superposition temps/température, pour une température de référence de 200 °C (b) ($D = 0.93\text{ mm}$, $L/D = 4$ et $\alpha = 45^\circ$).

A. VI. 3. Quantification du défaut hélicoïdal pour le PP



A. 6. 3 : Variation de la fréquence de l'instabilité avec le taux de cisaillement apparent, pour des températures de 200, 208 et 215 °C (a), et après application du principe de superposition temps/température, pour une température de référence de 200 °C (b) ($D = 0.93$ mm, $L/D = 4$ et $\alpha = 45^\circ$).

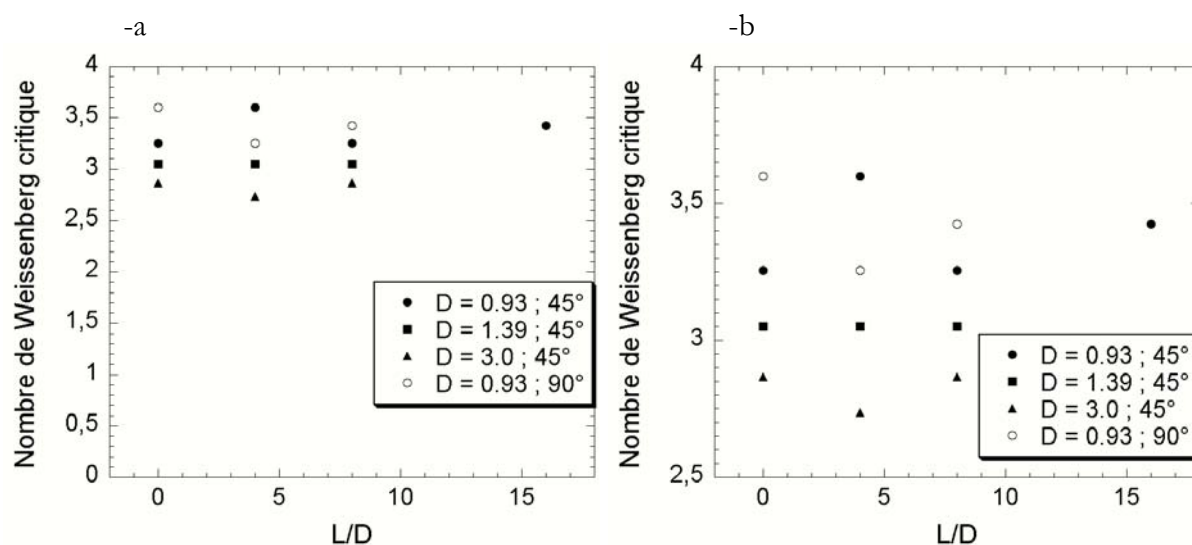
A. VII. Contrainte élongationnelle critique, calculée en rhéométrie capillaire, pour le PS 2



A. 7. 1 : Variation de la contrainte élongationnelle critique pour différents diamètres et longueurs de filière, et pour différentes températures, dans le cas du PS 2.

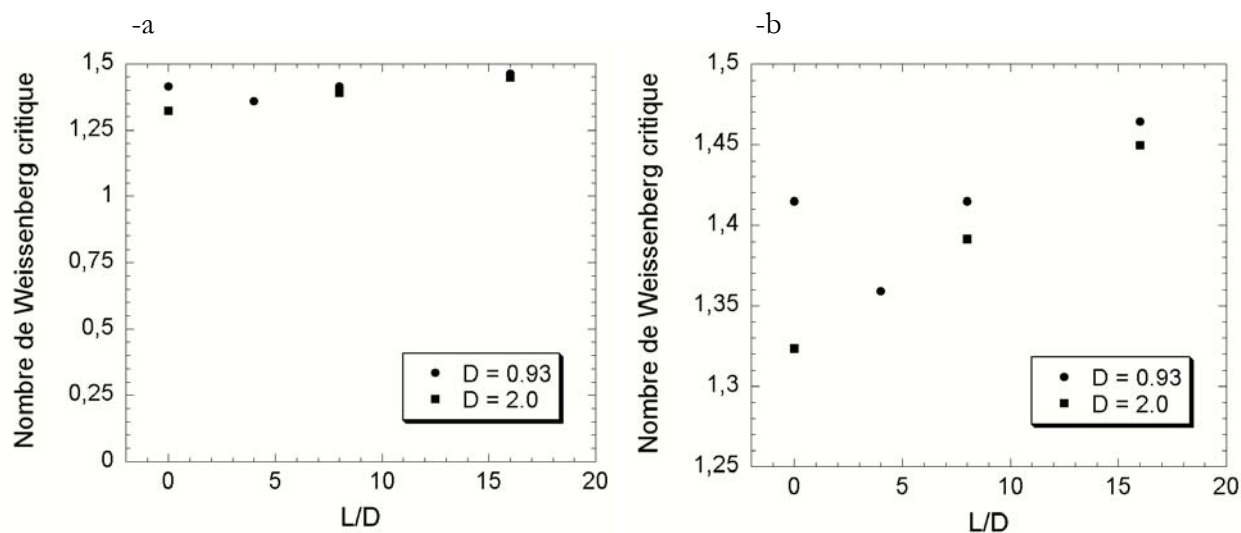
A. VIII. Nombre de Weissenberg critique calculé en rhéométrie capillaire

A. VIII. 1. Déclenchement du défaut hélicoïdal pour le PP



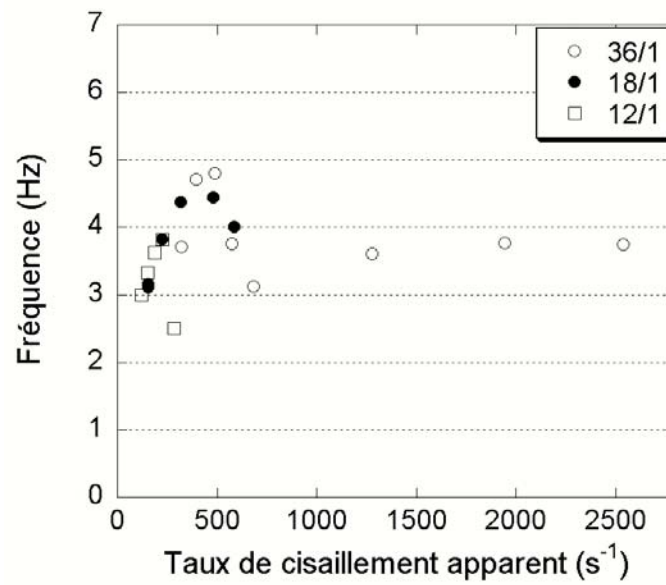
A. 8. 1. : Variation du nombre de Weissenberg critique pour différents diamètres et longueurs de filière, à 200 °C. La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

A. VIII. 2. Déclenchement du défaut hélicoïdal pour le PS 2



A. 8. 2. : Variation du nombre de Weissenberg critique pour différents diamètres et longueurs de filière, à 180 °C. La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

A. IX. Fréquence du défaut volumique périodique pour le PP, en filière plate



A. 9. 1 : Variation de la fréquence en fonction du taux de cisaillement apparent, à 200 °C, pour trois rapports de contraction différents ($L/H = 20.75$ et $\alpha = 90^\circ$).

A. X. Identification des paramètres du modèle Rolie-Poly

A. X. 1. Equation sans étirement en régime permanent

L'équation sans étirement proposée par Likhtman et Graham s'écrit :

$$\frac{dA}{dt} = \nabla u \cdot A + A \nabla u^T - \frac{1}{\tau_d} \left(A - \frac{I}{3} \right) - 2 \text{Tr}(\nabla u \cdot A) \left(A + \beta \left(A - \frac{I}{3} \right) \right)$$

En cisaillement simple, on a :

$$\nabla u = \begin{pmatrix} 0 & \dot{\gamma} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \text{ et } \nabla u^T = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ \dot{\gamma} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

$$\text{Le tenseur } A \text{ s'écrit en cisaillement simple : } A = \begin{pmatrix} A_{xx} & A_{xy} & 0 \\ A_{xy} & A_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & A_{zz} \end{pmatrix}$$

$$\text{On a : } A_{yy} = A_{zz} \text{ et } A_{xx} + A_{yy} + A_{zz} = 1$$

D'après l'équation sans étirement, on écrit, en régime permanent :

$$\begin{aligned} \frac{dA}{dt} = 0 = & \begin{pmatrix} 0 & \dot{\gamma} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_{xx} & A_{xy} & 0 \\ A_{xy} & A_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & A_{zz} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} A_{xx} & A_{xy} & 0 \\ A_{xy} & A_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & A_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ \dot{\gamma} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} - \frac{1}{\tau_d} \begin{pmatrix} A_{xx} - \frac{1}{3} & A_{xy} & 0 \\ A_{xy} & A_{yy} - \frac{1}{3} & 0 \\ 0 & 0 & A_{zz} - \frac{1}{3} \end{pmatrix} \\ & - 2 \left[\text{Tr} \begin{pmatrix} 0 & \dot{\gamma} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_{xx} & A_{xy} & 0 \\ A_{xy} & A_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & A_{zz} \end{pmatrix} \right] \left[\begin{pmatrix} A_{xx} & A_{xy} & 0 \\ A_{xy} & A_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & A_{zz} \end{pmatrix} + \beta \begin{pmatrix} A_{xx} - \frac{1}{3} & A_{xy} & 0 \\ A_{xy} & A_{yy} - \frac{1}{3} & 0 \\ 0 & 0 & A_{zz} - \frac{1}{3} \end{pmatrix} \right] \end{aligned}$$

D'où le système à 4 équations :

$$\left\{ \begin{aligned} 2A_{xy} \dot{\gamma} - \frac{1}{\tau_d} \left(A_{xx} - \frac{1}{3} \right) - 2A_{xy} \dot{\gamma} \left(A_{xx} (1 + \beta) - \frac{\beta}{3} \right) &= 0 \\ -\frac{1}{\tau_d} \left(A_{yy} - \frac{1}{3} \right) - 2A_{xy} \dot{\gamma} \left(A_{yy} (1 + \beta) - \frac{\beta}{3} \right) &= 0 \\ -\frac{1}{\tau_d} \left(A_{zz} - \frac{1}{3} \right) - 2A_{xy} \dot{\gamma} \left(A_{zz} (1 + \beta) - \frac{\beta}{3} \right) &= 0 \\ \dot{\gamma} A_{yy} - \frac{A_{xy}}{\tau_d} - 2\dot{\gamma} A_{xy}^2 (1 + \beta) &= 0 \end{aligned} \right.$$

En posant $M_1 = A_{xx} - A_{yy}$ et $A_{yy} = \frac{(1-M_1)}{3}$, le système devient :

$$\begin{cases} 2A_{xy}\dot{\gamma} - \frac{M_1}{\tau_d} - 2A_{xy}\dot{\gamma}(M_1(1+\beta)) = 0 \\ \dot{\gamma}\left[\frac{1}{3} - \frac{M_1}{3}\right] - \frac{A_{xy}}{\tau_d} - 2\dot{\gamma}A_{xy}^2(1+\beta) = 0 \end{cases}$$

Il s'agit d'un système de deux équations à deux inconnus M_1 et A_{xy} .

On résout l'équation en A_{xy} définie comme ci-dessous :

$$-1 + A_{xy}\left(2\dot{\gamma}\tau_d + \frac{3}{\dot{\gamma}\tau_d} - 2\dot{\gamma}\tau_d(1+\beta)\right) + 12A_{xy}^2(1+\beta) + 12A_{xy}^3\dot{\gamma}\tau_d(1+\beta)^2 = 0$$

On pose :

$$Y = 3\beta(\dot{\gamma}\tau_d)^2 + 9(\dot{\gamma}\tau_d)^2 + 1 + (\dot{\gamma}\tau_d) \left[\sqrt{-8(\dot{\gamma}\tau_d)^4\beta^3 - 3(\dot{\gamma}\tau_d)^2\beta^2 + 54(\dot{\gamma}\tau_d)^2\beta + 81(\dot{\gamma}\tau_d)^2 + 18} \right]$$

La solution explicite de l'équation en A_{xy} s'écrit :

$$A_{xy} = \frac{1}{6} \frac{Y^{\frac{2}{3}} + 2\beta(\dot{\gamma}\tau_d)^2 + 1 - 2Y^{\frac{1}{3}}}{\dot{\gamma}\tau_d(1+\beta)Y^{\frac{1}{3}}}$$

Le terme en A_{xy} est valable pour un mode associé au temps de relaxation τ_d^i et l'expression de la viscosité s'écrit pour chaque mode i de relaxation :

$$\eta^i(\dot{\gamma}) = \frac{3G^i A_{xy}^i}{\dot{\gamma}} \text{ avec } \eta(\dot{\gamma}) = \sum_1^6 \eta^i(\dot{\gamma}) = \sum_1^6 \frac{3G^i A_{xy}^i}{\dot{\gamma}}.$$

A. X. 2. Equation avec étirement en régime permanent

La démarche est la même que précédemment en utilisant l'équation avec étirement proposée par Likhtman et Graham :

$$\frac{dA}{dt} = \nabla u \cdot A + A \nabla u^T - \frac{1}{\tau_d} \left(A - \frac{I}{3}\right) - \frac{2(1 - \sqrt{\frac{1}{TrA}})}{\tau_R} \left(A + \beta(TrA)^\delta \left(A - \frac{I}{3}\right)\right)$$

En cisaillement simple, on a :

$$\nabla u = \begin{pmatrix} 0 & \dot{\gamma} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \text{ et } \nabla u^T = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ \dot{\gamma} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Le tenseur \mathcal{A} s'écrit en cisaillement simple : $A = \begin{pmatrix} A_{xx} & A_{xy} & 0 \\ A_{xy} & A_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & A_{zz} \end{pmatrix}$

On a : $\lambda^2 = TrA = A_{xx} + A_{yy} + A_{zz} = A_{xx} + 2A_{yy}$, et $\delta = -\frac{1}{2}$;

On obtient le système :

$$\left\{ \begin{array}{l} 2A_{xy} \dot{\gamma} - \frac{1}{\tau_d} \left(A_{xx} - \frac{1}{3} \right) - \frac{2 \left(1 - \frac{1}{\lambda} \right)}{\tau_R} \left(A_{xx} + \frac{\beta}{\lambda} \left(A_{xx} - \frac{1}{3} \right) \right) = 0 \\ -\frac{1}{\tau_d} \left(A_{yy} - \frac{1}{3} \right) - \frac{2 \left(1 - \frac{1}{\lambda} \right)}{\tau_R} \left(A_{yy} + \frac{\beta}{\lambda} \left(A_{yy} - \frac{1}{3} \right) \right) = 0 \\ -\frac{1}{\tau_d} \left(A_{zz} - \frac{1}{3} \right) - \frac{2 \left(1 - \frac{1}{\lambda} \right)}{\tau_R} \left(A_{zz} + \frac{\beta}{\lambda} \left(A_{zz} - \frac{1}{3} \right) \right) = 0 \\ \frac{\dot{\gamma}}{3} (\lambda^2 - M_1) - \frac{A_{xy}}{\tau_d} - \frac{2 \left(1 - \frac{1}{\lambda} \right) \left(1 + \frac{\beta}{\lambda} \right) A_{xy}}{\tau_R} = 0 \end{array} \right.$$

De plus, on a : $M_1 = A_{xx} - A_{yy}$ et $A_{yy} = \frac{1}{3} (\lambda^2 - M_1)$

D'où :

$$\left\{ \begin{array}{l} 2A_{xy} \dot{\gamma} - \frac{M_1}{\tau_d} - 2A_{xy} \dot{\gamma} (M_1 (1 + \beta)) = 0 \\ \frac{\dot{\gamma}}{3} (\lambda^2 - M_1) - \frac{A_{xy}}{\tau_d} - \frac{2 \left(1 - \frac{1}{\lambda} \right) \left(1 + \frac{\beta}{\lambda} \right) A_{xy}}{\tau_R} = 0 \\ \frac{1}{2\lambda} \left[2A_{xy} \dot{\gamma} - \frac{(\lambda^2 - 1)}{\tau_d} - \frac{2 \left(1 - \frac{1}{\lambda} \right)}{\tau_R} \left(\lambda^2 + \frac{\beta}{\lambda} (\lambda^2 - 1) \right) \right] = 0 \end{array} \right.$$

Il s'agit d'un système de trois équations à trois inconnues M_1 , A_{xy} et λ .

Par la suite, on a exprimé les variables M_1 et A_{xy} telles que :

$$M_1 = f(A_{xy}, \lambda) \text{ puis } A_{xy} = g(\lambda)$$

On obtient une équation non-linéaire en λ dont la complexe expression est présentée sur trois lignes successives.

$$\frac{2\dot{\gamma}\lambda^4\tau_d\tau_R\left[\lambda^2\tau_R+2\tau_d\lambda^2+2\tau_d\lambda\beta-2\tau_d\lambda-2\tau_d\beta\right]}{2\dot{\gamma}^2\lambda^4\tau_d^2\tau_R^2+3\lambda^4\tau_R^2+12\lambda^4\tau_R\tau_d+12\lambda^3\tau_R\tau_d\beta-12\lambda^3\tau_R\tau_d-12\lambda^2\tau_R\tau_d\beta+12\lambda^4\tau_d^2+24\lambda^3\tau_d^2\beta-24\lambda^3\tau_d^2\beta}$$

$$\frac{-48\lambda^2\tau_d^2\beta+12\lambda^2\tau_d^2\beta^2-24\lambda\tau_d^2\beta^2+12\lambda^2\tau_d^2+24\lambda\tau_d^2\beta+12\tau_d^2\beta^2}{\lambda^2-1-\frac{2\left[1-\frac{1}{\lambda}\right]\left[\lambda^2+\frac{\beta(\lambda^2-1)}{\lambda}\right]}{\tau_R}}=0$$

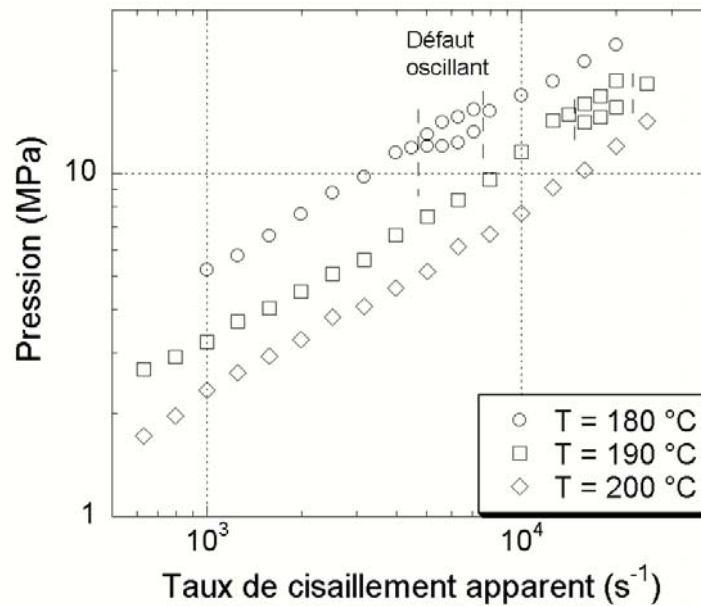
L'équation précédente est résolue suivant un schéma de Newton.

A partir de la solution en λ , on peut calculer le terme A_{xy} qui reste également valable pour un mode associé au temps de relaxation τ_d^i et l'expression de la viscosité s'écrit pour chaque mode i de relaxation :

$$\eta^i(\dot{\gamma}) = \frac{3G^i A_{xy}^i}{\dot{\gamma}} \text{ avec } \eta(\dot{\gamma}) = \sum_1^6 \eta^i(\dot{\gamma}) = \sum_1^6 \frac{3G^i A_{xy}^i}{\dot{\gamma}}.$$

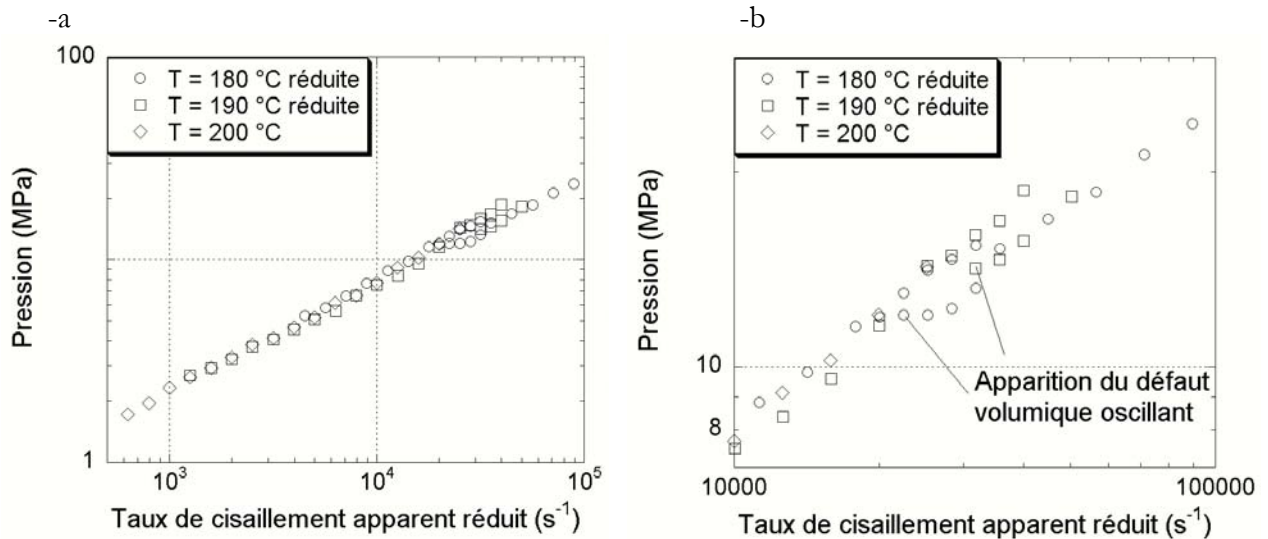
A. XI. Influence de la température sur le déclenchement du défaut volumique oscillant, avec le PS 2

A. XI. 1. Courbes d'écoulement apparentes obtenues avec $L/D = 4$



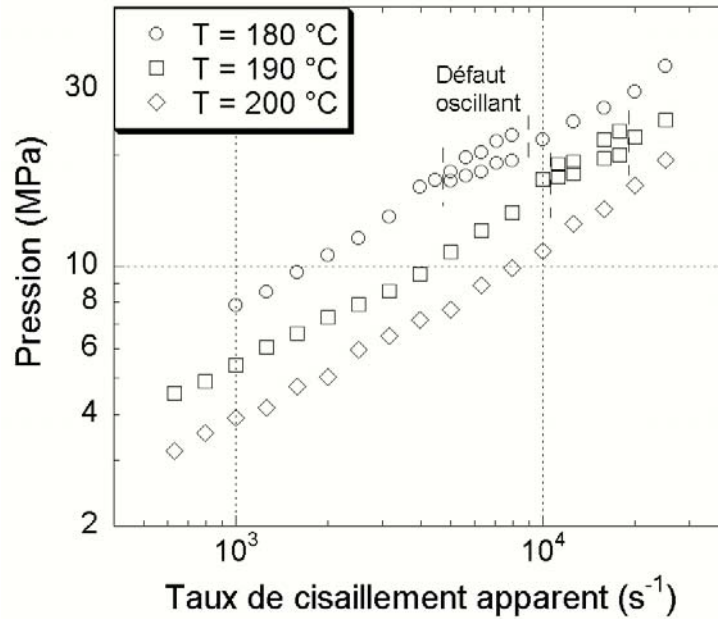
A. 11. 1 : Courbes d'écoulement apparentes obtenues pour des températures de 180, 190 et 200 °C ($D = 0.93$ mm, $L/D = 4$ et $\alpha = 90^\circ$).

Après l'application du principe de superposition temps/température, pour une température de référence de 200 °C, on obtient les courbes présentées sur les figures A. 11. 2.



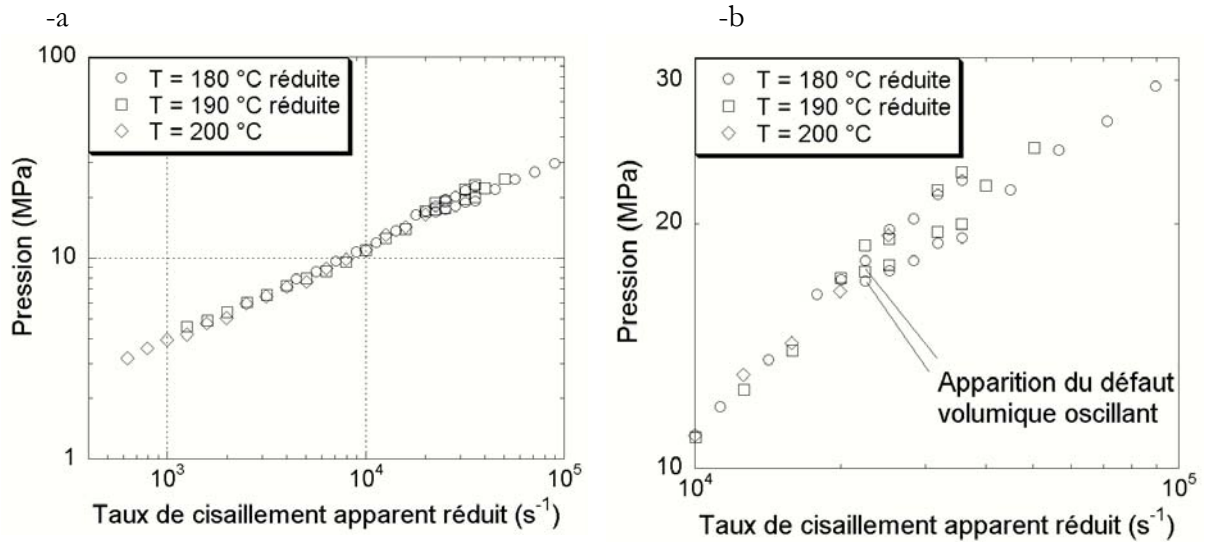
A. 11. 2: Courbes d'écoulement apparentes après application du principe de superposition temps/température, pour une température de référence de 200 °C ($D = 0.93$ mm, $L/D = 4$ et $\alpha = 90^\circ$). La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

A. XI. 2. Courbes d'écoulement apparentes obtenues avec $L/D = 8$



A. 11. 3 : Courbes d'écoulement apparentes obtenues pour des températures de 180, 190 et 200 °C ($D = 0.93$ mm, $L/D = 8$ et $\alpha = 90^\circ$).

Après l'application du principe de superposition temps/température, pour une température de référence de 200 °C, on obtient les courbes présentées sur les figures A. 11. 4.



A. 11. 4 : Courbes d'écoulement apparentes après application du principe de superposition temps/température, pour une température de référence de 200 °C ($D = 0.93$ mm, $L/D = 8$ et $\alpha = 90^\circ$). La figure (b) est à une échelle zoomée par rapport à la figure (a).

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] M. M. Denn. Extrusion instabilities and wall slip, *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 33 : 265-287, 2001.
- [2] R. G. Larson. Instabilities in viscoelastic flows, *Rheol. Acta*, 31 : 213-263, 1992.
- [3] C. J. S. Petrie, M.M. Denn. Instabilities in polymer processing, *AIChE J.*, 22 : 209-236, 1976.
- [4] J. P. Tordella. Unstable flow of molten polymers, *Rheology*, F. R. Eirich, Vol. V., Academic Press, New York, 1969.
- [5] J. F. Agassant, P. Avenas, J. Ph. Sergent, B. Vergnes, M. Vincent. La mise en forme des matières plastiques, Lavoisier, Tec. Doc., 3^{ème} édition, 1996.
- [6] J. L. Den Otter. Some investigations of melt fracture, *Rheol. Acta.*, 10 : 200-207, 1971.
- [7] L. Robert. Instabilités oscillante de polyéthylènes linéaires : observations et interprétations, Thèse de doctorat, Université de Nice Sophia Antipolis, France, 2001.
- [8] C. Venet, B. Vergnes. Experimental characterization of sharkskin in polyethylenes, *J. Rheol.*, 44 : 1319-1334, 2000.
- [9] P. Beaufils, B. Vergnes, J. F. Agassant. Characterization of the sharkskin defect and its development with the flow conditions, *Intern. Polym. Proc.*, 4 : 78-84, 1989.
- [10] N. El Kissi, J. M. Piau. Stability phenomena during polymer melt extrusion, in J. M. Piau and J. F. Agassant, editors, *Rheology for Polymer Melt Processing*, Rheology series, 5. Elsevier, 1996.
- [11] C. Venet. Propriétés d'écoulement et défauts de surface de résines polyéthylènes, Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, France, 1996.
- [12] G. V. Vinogradov, A. Ya. Malkin. *Rheology of polymers*, Mir, Moscow, 1980.
- [13] G. Sornberger, J. C. Quantin, R. Fajolle, B. Vergnes, J. F. Agassant. Experimental study of the sharkskin defect in linear low density polyethylene, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 23 : 123-135, 1987.
- [14] C. Venet, B. Vergnes. Stress distribution around capillary die exit : an interpretation of onset of sharkskin defect, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 93 : 117-132, 2000.
- [15] R. Rutgers, M. R. Mackley. The correlation of experimental surface extrusion instabilities with numerically predicted exit surface stress concentrations and melt strength for linear low density polyethylene, *J. Rheol.*, 44 : 1319-1334, 2000.

- [16] J. M. Piau, N. El Kissi, F. Toussaint, A. Mezghani. Distortions of polymer melts extrudates and their elimination using slippery surfaces, *Rheol. Acta*, 34 : 40-57, 1995.
- [17] H. Münstedt, M. Schmidt, E. Wassner. Stick and slip phenomena during extrusion of polyethylene melts as investigated by laser-Doppler velocimetry, *J. Rheol.*, 44 : 413-427, 2000.
- [18] L. Robert, Y. Demay, B. Vergnes. Stick-slip flow of high density polyethylene in a transparent slit die investigated by laser Doppler velocimetry, *Rheol. Acta*, 43, 89-98, 2004.
- [19] J. J. Baik, C. Tzoganakis. A study of extrudate distortion in controlled-rheology polypropylenes, *Polym. Eng. Sci.*, 38 : 274-281, 1998.
- [20] T. F. Ballenger, I. J. Chen, J. W. Crowder, G. E. Hagler, D.C Bogue, J. L. White. Polymer melt flow instabilities in extrusion : investigation of the mechanism and material and geometric variables, *Trans. Soc. Rheol.*, 15 : 195-215, 1971.
- [21] E. B. Bagley, A. M. Birks. Flow of polyethylene into a capillary, *J. Appl. Phys.*, 31 : 556-561, 1960.
- [22] E. B. Bagley, H. P. Schreiber. Effect of die entry geometry on polymer melt fracture and extrudate distortion, *Trans. Soc. Rheol.*, 5 : 341-353, 1961.
- [23] J. M. Piau, N. El Kissi, B. Tremblay. Influence of upstream instabilities and wall slip on melt fracture phenomena during silicones extrusion through orifice dies, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 34 : 145-180, 1990.
- [24] J. L. White. Critique on flow patterns in polymer fluids at the entrance of a die and instabilities leading to extrudate distortions, *Appl. Poly. Symp.*, 20 : 155-174, 1973.
- [25] T. F. Ballenger, J. L. White. The development of the velocity field in polymer melts in a reservoir approaching a capillary die, *J. Appl. Poly. Sci.*, 15 : 1949-1962, 1971.
- [26] J. M. Piau, N. El Kissi, B. Tremblay. Low Reynolds number flow visualisation of linear and branched silicones upstream of orifices dies, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 30 : 197-232, 1988.
- [27] K. Nakamura, S. Ituaki, T. Nishimura, A. Horikawa. Instability of polymeric flow through an abrupt contraction, *Trans. J. Textile Mach. Soc. Japan*, 40 : 57-65, 1987.
- [28] D. V. Boger. Viscoelastic flows through contraction, *Ann. Fluid Mech.*, 19 : 157-182, 1987.
- [29] Y. Oyanagi. A study of irregular flow behavior of high density polyethylene, *Appl. Poly. Symp.*, 20 : 123-136, 1973.
- [30] N. Bergem. Visualization studies of polymer melt flow anomalies in extrusion, *Proc VII Congress Rheology*, Gothenberg, 50-54, 1976.
- [31] Y. Goutille, J. C. Majeste, J. F. Tassin, J. Guillet. Molecular structure and gross melt fracture triggering, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 111 : 175-198, 2003.

- [32] F. Legrand, J. M. Piau. Spatially resolved stress birefringence and flow visualisation in the flow instabilities of a polydimethylsyloxane extruded through a slit die, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 77 : 123-150, 1998.
- [33] E. Wassner, M. Schmidt, H. Münstedt. Entry flow of a low density polyethylene melt into a slit die : an experimental study by laser-Doppler velocimetry, *J. Rheol.*, 43 : 1339-1353, 1999.
- [34] S. Nigen. Instabilités en extrusion de polymères fondus, Thèse de doctorat, Université Joseph Fournier, Grenoble, France, 2000.
- [35] S. Nigen, N. El Kissi, J. M. Piau, S. Sadun. Velocity field for polymer melts extrusion using particle image velocimetry Stable and unstable flow regimes, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 112 : 177-202, 2003.
- [36] J. P. Tordella. An instability in the flow of molten polymers, *Rheol. Acta.*, 1 : 216-221, 1958.
- [37] I. B. Kasatchkov, S. G. Hatzikiriakos, C. W. Stewart. Extrudate distortion in the capillary/slit extrusion of a molten polypropylene, *Polym. Eng. Sci.*, 35 : 1864-1871, 1995.
- [38] Y. Goutille, J. Guillet. Influence of filters in the die entrance region on gross melt fracture : extrudate and flow visualization, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 102 : 19-36, 2001.
- [39] R. S. Spencer, R. E. Dillon. The viscous flow of polystyrene, *J. Colloid Sci.*, 4 : 241-255, 1949.
- [40] J. L. S. Wales. Apparatus for the measurement of flow birefringence of polymer melts at high shear stresses, *Rheol. Acta*, 8 : 38, 1969.
- [41] J. L. Den Otter. Mechanisms of melt fracture, *Plast. Polymers*, 155-168, 1970.
- [42] F. Ramsteiner. The effect of die geometry on flow resistance, extrudate dilatation and melt fracture of plastics melts, *Kunststoffe*, 62 : 766, 1972.
- [43] A. B. Metzner, E. L. Carley, I. K. Park. Polymeric melts : a study of steady-state flow, extrudate irregularities and normal stresses, *Modern Plastics*, 133-140, 1960.
- [44] J. M. Piau, S. Nigen, N. El Kissi. Effect of the die entrance filtering on mitigation of upstream instability during extrusion of polymers melts, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 91 : 37-57, 2000.
- [45] J. Vlachopoulos, M. Alam. Critical stress and recoverable shear for polymer melt fracture, *Polym. Eng. Sci.*, 10 : 193-203, 1970.
- [46] R. S. Spencer, R. E. Dillon. The viscous flow of molten polystyrene, *J. Colloid Sci.*, 3 : 163-180, 1948.
- [47] J. M. Lupton and R. W. Regester. Melt flow of polyethylene at high rates, *Polym. Eng. Sci*, 5 : 235-245, 1965.
- [48] J. J. Benbow and P. Lamb. New aspects of melt fracture, *SPE transactions*, 7-17, 1963.

- [49] G. H. McKinley, W. P. Raiford, R. A. Brown, R. C. Armstrong. Nonlinear dynamics of viscoelastic flow in axisymmetric abrupt contraction, *J. Fluid Mech.*, 23 : 411-456, 1991.
- [50] F. N. Cogswell. Converging flow of polymer melts in extrusion dies , *Polym. Eng. Sci.*, 12 : 64-73, 1972.
- [51] S. Kim, J. M. Dealy. Gross melt fracture of polyethylene. I : A criterion based on tensile stress, *Polym. Eng. Sci.*, 42 : 482-494, 2002.
- [52] E. B. Bagley. The separation of elastic and viscous effects in polymer flow, *Trans. Soc. Rheol.*, 5 : 355-368, 1961.
- [53] A. E. Everage, R. L. Ballman. A mechanism for polymer melt or solution fracture, *J. Appl. Poly. Sci.*, 18 : 933, 1974.
- [54] D. R. Paul, L.H. Southern. The role of entanglements in the elastic fracture of polymer solutions, *J. Appl. Poly. Sci.*, 19 : 3375-3380, 1975.
- [55] A. Lavernhe-Gerbier. Modèles moléculaires appliqués aux instabilités d'écoulement de polymères fondus, Thèse de doctorat, Université de Pau et des Pays de l'Adour, France, 2003.
- [56] J. P. Villemaire. Etude d'un rhéomètre à pré-cisaillement : le Rhéoplast. Application à la mesure du comportement visqueux, Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, Sophia-Antipolis, France, 1993.
- [57] E. B. Bagley. End corrections in the capillary flow of polyethylene, *J. App. Phys.*, 28 : 624-627, 1957.
- [58] R. Muller, B. Vergnes. Validity of the stress optical law and application of birefringence to polymer complex flows, in J. M. Piau and J. F. Agassant, editors, *Rheology for Polymer Melt Processing*, Rheology series, 5. Elsevier, 1996.
- [59] J. L. S. Wales. The application of flow birefringence to rheological studies of polymer melts, Delft University Press (1976).
- [60] C. Combeaud, Y. Demay, B. Vergnes. Etude expérimentale du défaut hélicoïdal d'un polystyrène en écoulement, *Rhéologie*, 4 : 50-57, 2003.
- [61] J. Vlachopoulos, S. Lidorikis. Melt fracture of polystyrene, *Polym. Eng. Sci.*, 11 : 1-5, 1971.
- [62] C. Combeaud, Y. Demay, B. Vergnes. Experimental study of the volume defects in polystyrene extrusion, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 121 : 175-185, 2004.
- [63] R. Graham, A. Likhtman, T. McLeish, S. Milner. Microscopic theory of linear entangled polymer chains under rapid deformation including chain stretch and convective constrain release, *J. Rheol.*, 47 : 1171-1200, 2003.
- [64] A. E. Likhtman, R. S. Graham. Simple constitutive equation for linear polymer melts derived from molecular theory : Rolie-Poly equation, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 114 : 1-12, 2003.

- [65] J. Den Doelder, R. Koopmans. Single-branch spurt of long-chain-branched polyolefins, soumis à J. Rheol., 2004.

ETUDE DES INSTABILITES VOLUMIQUES EN EXTRUSION DE POLYSTYRENE ET POLYPROPYLENE

Nous étudions expérimentalement les instabilités hélicoïdales et chaotiques, des défauts d'extrusion de polymères fondus, sur deux polystyrènes et un polypropylène à l'aide de deux dispositifs expérimentaux : un rhéomètre capillaire et une extrudeuse monovis, munie d'une filière plate à parois transparentes, permettant d'effectuer des mesures de biréfringence d'écoulement et de vélocimétrie laser-Doppler. Dans ce dernier cas, on dispose d'une géométrie d'écoulement constituée d'un réservoir, suivi d'une contraction et d'un canal d'écoulement. En rhéométrie capillaire, nous avons étudié l'influence des conditions d'écoulement (diamètre, longueur, angle d'entrée de la filière, température...) sur le déclenchement de l'instabilité hélicoïdale. Les essais de biréfringence ont permis l'observation d'oscillations transverses d'isochromes dans le réservoir : lors de ce régime instable, l'écoulement principal a lieu de façon non symétrique dans le canal. On montre également que l'utilisation de « convergent doux » permet de repousser la déstabilisation de l'écoulement d'entrée à des débits sept fois plus importants que dans le cas d'une contraction brusque. On s'attache à mesurer, sur l'axe de symétrie du réservoir, des premières différences de contraintes normales et des taux de déformation dans les conditions critiques propres à l'initiation du défaut, par biréfringence d'écoulement et vélocimétrie laser-Doppler, respectivement. Des calculs viscoélastiques de l'écoulement par éléments finis ont également permis l'estimation de la répartition des contraintes élongationnelles autour de la contraction, dans les conditions critiques d'apparition de l'instabilité.

Mots clefs :

Extrusion, instabilité volumique, polystyrène, polypropylène, rhéologie, biréfringence d'écoulement, vélocimétrie laser-Doppler, viscoélasticité

VOLUME INSTABILITIES IN POLYSTYRENE AND POLYPROPYLENE EXTRUSION

We experimentally investigated the helical and chaotic instabilities of two polystyrenes and a polypropylene, with two extrusion devices : a capillary rheometer and a transparent slit die fed by an extruder, where birefringence experiments and laser-Doppler velocimetry measurements are feasible. In the last case, the flow geometry consists in a reservoir, followed by a contraction and a slit. In capillary rheometry, we focused on the flow conditions influence (diameter, length, entry angle die, temperature...) on the helical instability onset. In birefringence experiments, we observed isochromatic fringe oscillations in the reservoir : in this unsteady regime, the main flow reaches the contraction asymmetrically. The use of a smooth entry convergent permits to postpone the defect occurrence to flow rates seven times higher than with an abrupt contraction. Moreover, we measured, on the reservoir axis, the first normal stress difference and the elongation rates in critical flow conditions, by flow birefringence and laser-Doppler velocimetry, respectively. Finite elements simulations, using a viscoelastic model, were performed to calculate elongational stresses around the contraction, for critical flow conditions relative to the instability onset.

Keywords :

Extrusion, volume instability, polystyrene, polypropylene, rheology, flow birefringence, laser-Doppler velocimetry, viscoelasticity.